

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2003 年 10 月 2 日 (02.10.2003)

PCT

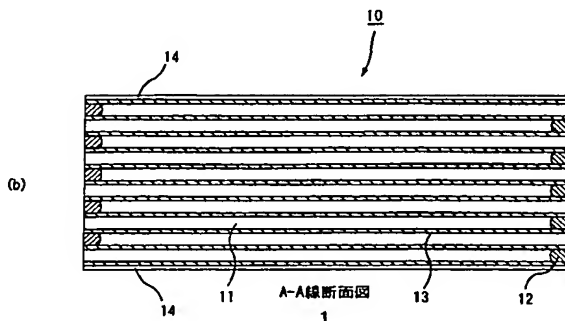
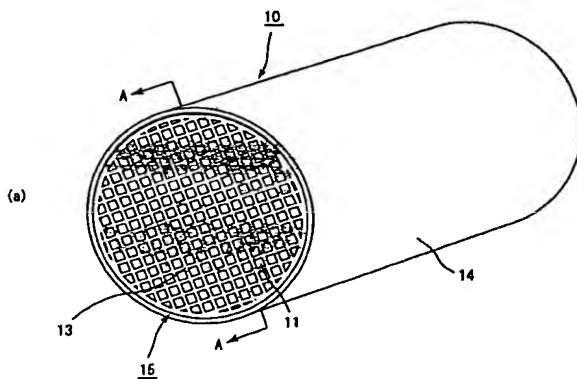
(10) 国際公開番号  
WO 03/081001 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: F01N 3/28 (72) 発明者; および  
(21) 国際出願番号: PCT/JP03/03495 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 柴田 俊明 (SHI-BATA, Toshiaki) [JP/JP]; 〒501-0695 岐阜県 揖斐郡 揖斐川町北方 1-1 イビデン株式会社大垣北工場内 Gifu (JP).  
(22) 国際出願日: 2003 年 3 月 24 日 (24.03.2003) (74) 代理人: 安富 康男 (YASUTOMI, Yasuo); 〒532-0011 大阪府 大阪市 淀川区西中島 5 丁目 4 番 20 号 中央ビル Osaka (JP).  
(25) 国際出願の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.  
(26) 国際公開の言語: 日本語 (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).  
(30) 優先権データ: 特願2002-81237 2002 年 3 月 22 日 (22.03.2002) JP 添付公開書類:  
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): イビデン株式会社 (IBIDEN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒503-8004 岐阜県 大垣市 神田町 2 丁目 1 番地 Gifu (JP). — 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: HONEYCOMB FILTER FOR CLARIFICATION OF EXHAUST GAS

(54) 発明の名称: 排気ガス浄化用ハニカムフィルタ



1...A-A LINE CROSS SECTION

(57) Abstract: A honeycomb filter for clarifying an exhaust gas which is composed of a cylinder of a porous ceramic having numbers of through holes separated by wall portions being provided in the longitudinal direction and arranged parallel with one another, and a sealing material layer formed around the perimeter of the cylinder, wherein the wall portions separating the through holes function as a filter for capturing particles, characterized in that in the cross section perpendicular to the through holes, the proportion ( $S\alpha$ ) of the area for the sealing layer relative to the total area of the cross section is 0.5 % or more, and the proportion ( $V\alpha$ ) of organic components relative to the whole honeycomb filter is 0.5 wt % or less. The above honeycomb filter has a relatively large amount of a sealing material layer and, in spite of this, the amount of organic matters in a gas discharged from the honeycomb filter is little increased as compared to a gas charged to the filter.

(57) 要約: 本発明の目的は、その内部に比較的多くのシール材層が存在していても、排出される排気ガス中の有機成分量が殆ど増加することのない排気ガス浄化用ハニカムフィルタを提供することである。本発明は、多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された多孔質セラミックからなる柱状体の外周部にシール材層が形成され、上記貫通孔を隔てる壁部が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハニカムフィルタであって、上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタにおける、上記貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\alpha$  が 0.5 % 以上であり、かつ、上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\alpha$  が 0.5 重量% 以下であることを特徴とする排気ガス浄化用ハニカムフィルタである。

WO 03/081001 A1



— 補正書・説明書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明細書

## 排気ガス浄化用ハニカムフィルタ

## 関連出願の記載

- 5      本出願は、２００２年３月２２日に出願された日本国特許出願２００２－８１  
      ２３７号を基礎出願として優先権主張する出願である。

## 技術分野

- 本発明は、ディーゼルエンジン等の内燃機関から排出される排気ガス中のパテ  
10    イキュレート等を除去するフィルタとして用いられる排気ガス浄化用ハニカムフ  
      ィルタに関する。

## 背景技術

- バス、トラック等の車両や建設機械等の内燃機関から排出される排気ガス中に  
15    含有されるパティキュレートが環境や人体に害を及ぼすことが最近問題となっ  
      ている。

      この排気ガスを多孔質セラミックを通過させ、排気ガス中のパティキュレート  
      を捕集して、排気ガスを浄化することができるセラミックフィルタが種々提案さ  
      れている。

- 20    このようなセラミックフィルタとして、従来から図１に示したハニカムフィル  
      タ１０のように、多数の貫通孔１１が壁部１３を隔てて長手方向に並設されたコ  
      ージェライト等からなる柱状体１５の外周にシール材層１４が形成された構造の  
      ものが提案されており、このハニカムフィルタ１０では、貫通孔１１同士を隔て  
      る壁部１３がフィルタとして機能するようになっている（例えば、実公平７－１  
25    ８３号参照）。

      即ち、柱状体１５は、一の焼結体からなるものであり、この柱状体１５に形成  
      された貫通孔１１は、図１（ｂ）に示したように、排気ガスの入り口側又は出口  
      側のいずれかが充填材１２により目封じされ、一の貫通孔１１に流入した排気ガ  
      スは、必ず貫通孔１１を隔てる壁部１３を通過した後、他の貫通孔１１から排出

されるようになっている。

また、シール材層 14 は、柱状体 15 の外周部を補強したり、ハニカムフィルタ 10 の断熱性を向上させたりする目的で設けられているものである。

また、最近では、上述したようなコーージェライト製のハニカムフィルタに代えて、耐熱性、機械的強度、捕集効率が高い、化学的に安定している及び圧力損失が小さい等の利点を有する多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタがよく用いられている。

上記多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタとして、図 2 に示したハニカムフィルタ 20 のように、炭化珪素からなる多孔質セラミック部材 30 がシール材層 23 を介して複数個結束されてセラミックブロック 25 を構成し、このセラミックブロック 25 の周囲にシール材層 24 が形成された構造のものが提案されている（例えば、特開 2001-162121 号公報参照）。また、この多孔質セラミック部材 30 は、図 3 に示したように、長手方向に多数の貫通孔 31 が並設され、貫通孔 31 同士を隔てる隔壁 33 がフィルタとして機能するようになっている。

即ち、多孔質セラミック部材 30 に形成された貫通孔 31 は、図 3 (b) に示したように、排気ガスの入り口側又は出口側の端部のいずれかが充填材 32 により目封じされ、一の貫通孔 31 に流入した排気ガスは、必ず貫通孔 31 を隔てる隔壁 33 を通過した後、他の貫通孔 31 から流出されるようになっている。

また、シール材層 24 は、ハニカムフィルタ 20 を内燃機関の排気通路に設置した際、セラミックブロック 25 の外周部から排気ガスが漏れ出すことを防止する目的で設けられているものである。

このような構成のハニカムフィルタ 10 やハニカムフィルタ 20 が内燃機関の排気通路に設置され、内燃機関より排出された排気ガス中のパーティキュレートは、このハニカムフィルタを通過する際に壁部 13 や隔壁 33 により捕捉され、排気ガスが浄化される。

特に、図 2 に示したハニカムフィルタ 20 は、極めて耐熱性に優れ、再生処理等も容易であるため、種々の大型車両やディーゼルエンジン搭載車両等に使用さ

れている。

ところが、従来、ハニカムフィルタのシール材層には比較的多くの有機成分が含まれていたため、シール材層が占める割合が大きなハニカムフィルタには、大量の有機成分が含まれていることとなっていた。

- 5      また、上記シール材層は完全な緻密体ではなく、その内部に排気ガスが僅かに流入するものであった。そのため、上述したようなシール材層に大量の有機成分を含むハニカムフィルタを、大型車両やディーゼルエンジン搭載車両等の排気通路に設置して使用すると、上記シール材層の内部に流入してくる排気ガスにより上記有機成分が外部へ排出され、排気ガスの有機成分（HC）量が大幅に増加することとなっていた。

- 10      また、上記外部へ排出される排気ガス中の有機成分を分解、除去する目的で、触媒を担持させたハニカムフィルタも提案されている。しかしながら、従来のハニカムフィルタでは、上記触媒によって充分に有機成分を分解、除去することができなかった。

15

#### 発明の要約

- 本発明は、これらの問題を解決するためになされたもので、その内部に比較的多くのシール材層が存在していても、排出される排気ガス中の有機成分量が殆ど増加することのない排気ガス浄化用ハニカムフィルタを提供することを目的とするものである。

20

第一の本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタは、多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された多孔質セラミックからなる柱状体の外周部にシール材層が形成され、上記貫通孔を隔てる壁部が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハニカムフィルタであって、

- 25      上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタにおける、上記貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\alpha$  が 0.5% 以上であり、かつ、上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\alpha$  が 0.5 重量% 以下であることを特徴とするものである。

また、第二の本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタは、多数の貫通孔が隔

壁を隔てて長手方向に並設された角柱形状の多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されてセラミックブロックを形成し、上記セラミックブロックの外周部にもシール材層が形成され、上記貫通孔を隔てる隔壁が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハニカムフィルタであつて、

上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタにおける、上記貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が2%以上であり、かつ、上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\beta$  が0.5重量%以下であることを特徴とするものである。

10 以下の説明では、第一の本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタのことを、単に、第一の本発明のハニカムフィルタともいい、第二の本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタのことを、単に、第二の本発明のハニカムフィルタともいい、両者を特に区別しない場合は、単に、本発明のハニカムフィルタともいう。

#### 15 図面の簡単な説明

図1(a)は、第一の本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタの一例を模式的に示した斜視図であり、図1(b)は、そのA-A線縦断面図である。

図2は、第二の本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタの一例を模式的に示した斜視図である。

20 図3(a)は、図2に示した第二の本発明のハニカムフィルタに用いる多孔質セラミック部材を模式的に示した斜視図であり、図3(b)は、そのB-B線縦断面図である。

図4は、第二の本発明のハニカムフィルタを製造する様子を模式的に示した側面図である。

25 図5は、実施例1～4及び比較例1に係るハニカムフィルタの、評価試験1及び評価試験2の結果を示したグラフである。

図6は、実施例5～8及び比較例2に係るハニカムフィルタの、評価試験1及び評価試験2の結果を示したグラフである。

図 7 は、実施例 9 ～ 12 及び比較例 3 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示したグラフである。

図 8 は、比較例 4 ～ 8 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示したグラフである。

5 図 9 は、実施例 13 ～ 16 及び比較例 9 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示したグラフである。

図 10 は、実施例 17 ～ 20 及び比較例 10 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示したグラフである。

10 図 11 は、実施例 21 ～ 24 及び比較例 11 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示したグラフである。

図 12 は、比較例 12 ～ 16 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示したグラフである。

#### 符号の説明

- 15 10、20 排気ガス浄化用ハニカムフィルタ  
11、31 貫通孔  
12、32 充填材  
13 壁部  
14、23、24 シール材層  
20 25 セラミックブロック  
30 多孔質セラミック部材  
33 隔壁

#### 発明の詳細な開示

25 始めに、第一の本発明のハニカムフィルタについて説明する。

第一の本発明のハニカムフィルタは、多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された多孔質セラミックからなる柱状体の外周部にシール材層が形成され、上記貫通孔を隔てる壁部が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された

排気ガス浄化用ハニカムフィルタであって、

上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタにおける、上記貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.5 % 以上であり、かつ、上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタに対する、  
5 有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.5 重量% 以下であることを特徴とする。

第一の本発明のハニカムフィルタの形状としては、例えば、図 1 に示したハニカムフィルタ 10 と略同様のものを挙げることができ、多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された柱状体の外周にシール材層が形成されている。また、この貫通孔同士を隔てる壁部がフィルタとして機能するようになっている。

10 即ち、上記柱状体に形成された貫通孔は、排気ガスの入り口側又は出口側の端部のいずれかが充填材により目封じされ、一の貫通孔に流入した排気ガスは、必ず上記貫通孔を隔てる壁部を通過した後、他の貫通孔から排出されるようになっている。

また、上記シール材層は、上記柱状体の外周部を補強したり、第一の本発明の  
15 ハニカムフィルタの断熱性を向上させたりする目的で設けられているものである。

ただし、第一の本発明のハニカムフィルタの形状は、図 1 に示したような円柱状に限定されることはなく、例えば、楕円柱状や角柱状等任意の形状のものを挙げることができる。

第一の本発明のハニカムフィルタにおいて、シール材層は、柱状体の外周にのみ形成されており、上記貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.5 % 以上である。即ち、  
20 第一の本発明のハニカムフィルタには、比較的多くのシール材層が存在している。

なお、上記  $S_{\alpha}$  とは、例えば、図 1 に示した円柱状のハニカムフィルタ 10 の端面において、シール材層 14 と柱状体 15 とにより形成される円の半径を  $r$  とした場合に  $\pi r^2$  で表される面積  $S_1$  と、上記端面におけるシール材層 14 の面積  $S_2$  とから  $(S_2 / S_1) \times 100$  で定義されるものである。  
25

上記  $S_{\alpha}$  が 0.5 % 未満であると、ハニカムフィルタの貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面に存在するシール材層は非常に薄く、上記シール材層には



排気ガスが流入しにくい。そのため、例え、後述するハニカムフィルタに対する有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.5 重量%を超えるような、大量の有機成分が含まれている場合であっても、この有機成分は外部へ排出されにくくなり、ハニカムフィルタを使用した際に外部に排出される排気ガス中の有機成分量の増加は微量となる。しかしながら、上記  $S_{\alpha}$  が 0.5 %未満であると、シール材層の面積が小さい過ぎるために、ハニカムフィルタのアイソスタティック強度（等方的圧力破壊強度）が不十分となる。

また、第一の本発明のハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.5 重量%以下である。

- 10     なお、上記  $V_{\alpha}$  とは、第一の本発明のハニカムフィルタの総重量を  $V_1$  とし、上記ハニカムフィルタに含まれる有機成分の総重量を  $V_2$  とした場合、 $(V_2 / V_1) \times 100$  で定義されるものである。

- 15     上記  $V_{\alpha}$  が 0.5 重量%を超えると、ハニカムフィルタに含有される有機成分量が多くなり、上述した  $S_{\alpha}$  が 0.5 %を超えるような、比較的多くのシール材層が存在する第一の本発明のハニカムフィルタを使用した場合、外部に排出される排気ガス中の有機成分量が大幅に増加することとなる。

- 20     また、第一の本発明のハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  は、0.1 重量%以下であることが望ましい。比較的多くのシール材層が存在する第一の本発明のハニカムフィルタを使用した場合、外部に排出される排気ガス中の有機成分量をより低減させることができる。また、排気ガス中の有機成分を分解、除去することができる触媒を第一の本発明のハニカムフィルタに担持させる場合には、シール材層に存在する有機成分が、上記触媒を付与する際に、上記触媒を含有するスラリーを吸収して、上記触媒を定着させる熱処理の際に、シール材層に急激な膨張等を起こさせ、シール材層のシール性を低下させることを防止することができたり、シール材層に存在する有機成分が、上記触媒を侵して、上記触媒の触媒作用を妨げることを防止することができたりするため、より多くの排気ガスの浄化が可能となると推定される。

このように、第一の本発明のハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V_{\alpha}$

を0.5重量%以下にする方法としては特に限定されず、例えば、後述する第一の本発明のハニカムフィルタを構成するシール材層の原料や、配合比等を調整する方法や、大量の有機成分を含むハニカム構造体を製造した後、該ハニカム構造体を加熱し、上記有機成分を分解、除去する方法等を挙げることができる。

- 5      上記シール材層を構成する材料としては特に限定されず、例えば、無機バインダー、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子からなるもの等を挙げることができる。

    上記無機バインダーとしては、例えば、シリカゾル、アルミナゾル等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上

- 10    記無機バインダーのなかでは、シリカゾルが望ましい。

- また、上記無機バインダーの含有量の下限は、固形分で、1重量%が望ましく、5重量%がさらに望ましい。一方、上記無機バインダーの含有量の上限は、固形分で、30重量%が望ましく、15重量%がより望ましく、9重量%がさらに望ましい。上記無機バインダーの含有量が1重量%未満では、接着強度の低下を招くことがあり、一方、30重量%を超えると、熱伝導率の低下を招くことがある。

    上記有機バインダーとしては、例えば、ポリビニルアルコール、メチルセルロース、エチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記有機バインダーのなかでは、カルボキシメチルセルロースが望ましい。

- 20    上記有機バインダーの含有量の下限は、固形分で、0.1重量%が望ましく、0.2重量%がより望ましく、0.4重量%がさらに望ましい。一方、上記有機バインダーの含有量の上限は、固形分で、5.0重量%が望ましく、1.0重量%がより望ましく、0.6重量%がさらに望ましい。上記有機バインダーの含有量が0.1重量%未満では、シール材層のマイグレーションを抑制するのが難しくなることがあり、一方、5.0重量%を超えると、シール材層の厚さによって、製造するハニカムフィルタに対する有機成分の割合 $V\alpha$ が0.5重量%を超えることがあり、ハニカムフィルタの製造時に、後工程として加熱処理を施す必要がある。

上記無機繊維としては、例えば、シリカーアルミナ、ムライト、アルミナ、シリカ等のセラミックファイバー等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記無機繊維のなかでは、シリカーアルミナファイバーが望ましい。

- 5      上記無機繊維の含有量の下限は、固形分で、10重量%が望ましく、20重量%がより望ましい。一方、上記無機繊維の含有量の上限は、固形分で、70重量%が望ましく、40重量%がより望ましく、30重量%がさらに望ましい。上記無機繊維の含有量が10重量%未満では、弾性が低下することがあり、一方、70重量%を超えると、熱伝導性の低下を招くとともに、弾性体としての効果が低下
- 10    下することがある。

上記無機粒子としては、例えば、炭化物、窒化物等を挙げることができ、具体的には、炭化珪素、窒化珪素、窒化硼素等からなる無機粉末又はウイスキー等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記無機粒子のなかでは、熱伝導性に優れる炭化珪素が望ましい。

- 15    上記無機粒子の含有量の下限は、固形分で3重量%が望ましく、10重量%がより望ましく、20重量%がさらに望ましい。一方、上記無機粒子の含有量の上限は、固形分で80重量%が望ましく、60重量%がより望ましく、40重量%がさらに望ましい。上記無機粒子の含有量が3重量%未満では、熱伝導率の低下を招くことがあり、一方、80重量%を超えると、シール材層が高温にさらされた場合に、接着強度の低下を招くことがある。
- 20

また、上記無機繊維のショット含有量の下限は、1重量%が望ましく、上限は、10重量%が望ましく、5重量%がより望ましく、3重量%がさらに望ましい。また、その繊維長の下限は、1mmが望ましく、上限は、100mmが望ましく、50mmがより望ましく、20mmがさらに望ましい。

- 25    ショット含有量を1重量%未満とするのは製造上困難であり、ショット含有量が10重量%を超えると、柱状体の外周を傷つけてしまうことがある。また、繊維長が1mm未満では、弾性を有するハニカムフィルタを形成することが難しく、100mmを超えると、毛玉のような形態をとりやすくなるため、無機粒子の分

散が悪くなるとともに、シール材層の厚みを薄くできない。

上記無機粒子の粒径の下限は、 $0.01\text{ }\mu\text{m}$ が望ましく、 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ がより望ましい。一方、上記無機粒子の粒径の上限は、 $100\text{ }\mu\text{m}$ が望ましく、 $15\text{ }\mu\text{m}$ がより望ましく、 $10\text{ }\mu\text{m}$ がさらに望ましい。無機粒子の粒径が $0.01\text{ }\mu\text{m}$ 未満では、コストが高くなることもあり、一方、無機粒子の粒径が $100\text{ }\mu\text{m}$ を超えると、接着力及び熱伝導性の低下を招くことがある。

ここで、第一の本発明のハニカムフィルタに含まれる有機成分は、具体的には、上記有機バインダーのことであり、第一の本発明のハニカムフィルタに対する、上記有機バインダーの割合 $V\alpha$ は $0.5$ 重量%以下である。

- 10 比較的多くのシール材層が存在しているハニカムフィルタに、このような有機成分が多く含まれていても、十分な酸素を含有する雰囲気において加熱された場合には、有機成分は、 $\text{CO}_2$ や $\text{H}_2\text{O}$ に分解されやすく、有毒ガスとはなりにくい。しかし、排気ガス浄化用ハニカムフィルタは、酸素の少ないエンジンの排気ガスが排出される部分に設置されるため、有機成分は完全に分解されず、メタン、
- 15 エタン、エチレン、プロピレン等の炭化水素や $\text{CO}$ 、 $\text{NO}_x$ 等の有毒ガスとして排出されやすく、大きな問題となる。

- しかしながら、第一の本発明のハニカムフィルタは、比較的多くのシール材層が存在していても、これらに含まれている有機成分が非常に少ないため、第一の本発明のハニカムフィルタを実際に使用した際には、外部に排出される排気ガス
- 20 中に含まれる上記炭化水素や $\text{CO}$ 、 $\text{NO}_x$ 等の有毒ガスは殆ど増加することがなく、ハニカムフィルタに含まれる有機成分に起因する問題は発生しない。

- 上記多孔質セラミックからなる柱状体の材料としては特に限定されず、例えば、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、窒化ホウ素、窒化チタン等の窒化物セラミック、炭化ケイ素、炭化ジルコニウム、炭化チタン、炭化タンタル、炭化タングステン
- 25 等の炭化物セラミック、アルミナ、ジルコニア、コージェライト、ムライト等の酸化物セラミック等を挙げることができるが、通常、コージェライト等の酸化物セラミックが使用される。安価に製造することができるとともに、比較的熱膨張係数が小さく、使用中に酸化されることがないからである。なお、上述したセラ

ミックに金属珪素を配合した珪素含有セラミック、珪素や珪酸塩化合物で結合されたセラミックも用いることができる。

- また、第一の本発明のハニカムフィルタの平均気孔径は $5 \sim 100 \mu\text{m}$ であることが望ましい。平均気孔径が $5 \mu\text{m}$ 未満であると、パーティキュレートが容易に目詰まりを起こすことがある。一方、平均気孔径が $100 \mu\text{m}$ を超えると、パーティキュレートが気孔を通り抜けてしまい、該パーティキュレートを捕集することができず、フィルタとして機能することができないことがある。

なお、上記多孔質セラミック部材の気孔径は、例えば、水銀圧入法、走査型電子顕微鏡（SEM）による測定等、従来公知の方法により測定することができる。

- また、第一の本発明のハニカムフィルタの気孔率は特に限定されないが、 $40 \sim 80\%$ であることが望ましい。気孔率が $40\%$ 未満であるとすぐに目詰まりを起こすことがある。一方、気孔率が $80\%$ を超えると、柱状体の強度が低下して容易に破壊されることがある。

- なお、上記気孔率は、水銀圧入法、アルキメデス法及び走査型電子顕微鏡（SEM）による測定等、従来公知の方法により測定することができる。

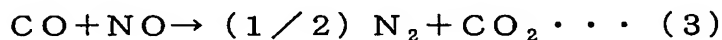
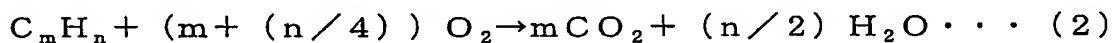
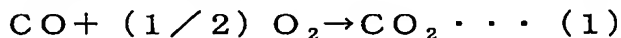
- このような柱状体を製造する際に使用するセラミックの粒径としては特に限定されないが、後の焼成工程で収縮が少ないものが望ましく、例えば、 $0.3 \sim 50 \mu\text{m}$ 程度の平均粒径を有する粉末 $100$ 重量部と、 $0.1 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 程度の平均粒径を有する粉末 $5 \sim 65$ 重量部とを組み合わせたものが望ましい。上記粒径のセラミック粉末を上記配合で混合することで、多孔質セラミックからなる柱状体を製造することができるからである。

- また、第一の本発明のハニカムフィルタの柱状体には、排気ガス浄化用触媒が担持されていることが望ましい。上記柱状体に排気ガス浄化用触媒が担持されていると、第一の本発明のハニカムフィルタは、排気ガス中のパーティキュレートを捕集するフィルタとして機能するとともに、排気ガス中のHC、CO、 $\text{NO}_x$ 等の有害成分や、第一の本発明のハニカムフィルタに僅かに含まれている有機成分から生じるHC等を確実に浄化する触媒コンバータとして機能することができるからである。

上記排気ガス浄化用触媒としては特に限定されず、例えば、白金、パラジウム、ロジウム等の貴金属を挙げることができる。これらの貴金属は単独で用いてもよく、複数を併用してもよい。

- 但し、上記貴金属からなる排気ガス浄化用触媒は、所謂、酸化触媒であるが、
- 5 上記排気ガス浄化用触媒としては、上記貴金属に限定されることはなく、排気ガス中のCO、HC及びNO<sub>x</sub>等の有害成分を浄化することができる触媒であれば、希土類、アルカリ金属、アルカリ土類金属等の任意のものを挙げることができる。

- このように、第一の本発明のハニカムフィルタに排気ガス浄化用触媒が担持されていると、エンジン等の内燃機関から排出された排気ガスに含有されているCO、HC及びNO<sub>x</sub>等の有害成分と、上記排気ガス浄化用触媒とが接触することで、主に下記反応式(1)～(3)に示したような反応が促進される。
- 10



- 15 上記反応式(1)、(2)より、排気ガスに含有されているCOとHCとは、CO<sub>2</sub>とH<sub>2</sub>Oとに酸化され、また、上記反応式(3)より、排気ガスに含有されているNO<sub>x</sub>は、COによりN<sub>2</sub>及びCO<sub>2</sub>に還元されるのである。

- 即ち、第一の本発明のハニカムフィルタに上記排気ガス浄化用触媒が担持されていると、排気ガスに含有されるCO、HC及びNO<sub>x</sub>等の有害成分が、CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O及びN<sub>2</sub>等に浄化され、外部へ排出されることとなる。
- 20

- 以上、説明した通り、第一の本発明のハニカムフィルタは、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合S<sub>α</sub>が0.5%以上と、比較的多くのシール材層が存在しているが、その内部に存在する有機成分の割合V<sub>α</sub>が0.5重量%以下と非常に少ないため、第一の本発明のハニカムフィルタをエンジン等の内燃機関の排気通路に設置して使用した場合であっても、排出される排気ガス中の有機成分が増加することは殆どない。
- 25

また、第一の本発明のハニカムフィルタの柱状体に排気ガス浄化用触媒を担持させ、排気ガス中のパティキュレートを捕集するフィルタとして機能するとともに

に、触媒コンバータとしても機能させると、第一の本発明のハニカムフィルタに僅かに含まれている有機成分が外部に排出された場合であっても、この有機成分は、確実に上記排気ガス浄化用触媒により分解、浄化される。

次に、第二の本発明のハニカムフィルタについて説明する。

- 5      第二の本発明のハニカムフィルタは、多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された角柱形状の多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されてセラミックブロックを形成し、上記セラミックブロックの外周部にもシール材層が形成され、上記貫通孔を隔てる隔壁が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハニカムフィルタであって、
- 10      上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタにおける、上記貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  が2%以上であり、かつ、上記排気ガス浄化用ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V \beta$  が0.5重量%以下であることを特徴とする。

- 第二の本発明のハニカムフィルタの形状としては、例えば、図2に示したハニカムフィルタ20と略同様のものを挙げることができ、多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されてセラミックブロックを構成し、このセラミックブロックの周囲にもシール材層が形成されている。また、この多孔質セラミック部材は、長手方向に多数の貫通孔が並設され、貫通孔同士を隔てる隔壁がフィルタとして機能するようになっている。
- 15

- 20      即ち、上記多孔質セラミック部材に形成された貫通孔は、排気ガスの入り口側又は出口側の端部のいずれかが充填材により目封じされ、一の貫通孔に流入した排気ガスは、必ず上記貫通孔を隔てる隔壁を通過した後、他の貫通孔から流出されるようになっている。

- また、上記セラミックブロックの外周に形成されたシール材層は、第二の本発明のハニカムフィルタを内燃機関の排気通路に設置した際、上記セラミックブロックの外周部から排気ガスが漏れ出すことを防止する目的で設けられているものである。
- 25

ただし、第二の本発明のハニカムフィルタの形状は、図2に示したような円柱

状に限定されることはなく、例えば、楕円柱状や角柱状等任意の形状のものを挙げることができる。

第二の本発明のハニカムフィルタにおいて、シール材層は、多孔質セラミック部材間、及び、セラミックブロックの外周に形成されており、上記貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 2% 以上である。即ち、第二の本発明のハニカムフィルタには、比較的多くのシール材層が存在している。

なお、上記  $S\beta$  とは、例えば、図 2 に示した円柱状のハニカムフィルタ 20 の端面において、シール材層 24 とセラミックブロック 25 とにより形成される円の半径を  $r'$  とした場合に  $\pi r'^2$  で表される面積  $S'1$  と、上記端面におけるシール材層 23 及びシール材層 24 の面積  $S'2$  とから  $(S'2/S'1) \times 100$  で定義されるものである。

上記  $S\beta$  が 2% 未満であると、ハニカムフィルタの貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面に存在するシール材層は非常に薄く、上記シール材層には排気ガスが流入しにくい。そのため、例え、後述するハニカムフィルタに対する有機成分の割合  $V\beta$  が 0.5 重量% を超えるような、大量の有機成分が含まれている場合であっても、この有機成分は外部へ排出されにくくなり、ハニカムフィルタを使用した際に外部に排出される排気ガス中の有機成分量の増加は微量となる。しかしながら、上記  $S\beta$  が 2% 未満であると、シール材層の面積が小さい過ぎるために、ハニカムフィルタのアイソスタティック強度（等方的圧力破壊強度）が不十分となる。

また、第二の本発明のハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\beta$  が 0.5 重量% 以下である。

なお、上記  $V\beta$  とは、第二の本発明のハニカムフィルタの総重量を  $V'1$  とし、上記ハニカムフィルタに含まれる有機成分の総重量を  $V'2$  とした場合、 $(V'2/V'1) \times 100$  で定義されるものである。

上記  $V\beta$  が 0.5 重量% を超えると、ハニカムフィルタに含有される有機成分量が多くなり、上述した  $S\beta$  が 2% を超えるような、比較的多くのシール材層が



存在する第二の本発明のハニカムフィルタを使用した場合、外部に排出される排気ガス中の有機成分量が大幅に増加することとなる。

- また、第二の本発明のハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\beta$  は、0.1重量%以下であることが望ましい。比較的多くのシール材層が存在する第二の本発明のハニカムフィルタを使用した場合、外部に排出される排気ガス中の有機成分量をより低減させることができる。また、排気ガス中の有機成分を分解、除去することができる触媒を第一の本発明のハニカムフィルタに担持させる場合には、シール材層に存在する有機成分が、上記触媒を付与する際に、上記触媒を含有するスラリーを吸収して、上記触媒を定着させる熱処理の際に、シール材層に急激な膨張等を起こさせ、シール材層のシール性を低下させることを防止することができたり、シール材層に存在する有機成分が、上記触媒を侵して、上記触媒の触媒作用を妨げることを防止することができたりするため、より多くの排気ガスの浄化が可能となると推定される。

- このように、第二の本発明のハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\beta$  を0.5重量%以下にする方法としては特に限定されず、例えば、後述する第二の本発明のハニカムフィルタを構成するシール材層の原料や、配合比等を調整する方法や、大量の有機成分を含むハニカム構造体を製造した後、該ハニカム構造体を加熱し、上記有機成分を分解、除去する方法等を挙げることができる。

- 上記シール材層を構成する材料としては特に限定されず、例えば、上述した第一の本発明のハニカムフィルタにおいて説明したシール材層の材料と同様の無機バインダー、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子からなるもの等を挙げることができる。

- ここで、第二の本発明のハニカムフィルタに含まれる有機成分は、具体的には、上記有機バインダーのことであり、第二の本発明のハニカムフィルタに対する、上記有機バインダーの割合  $V\beta$  は0.5重量%以下である。

比較的多くのシール材層が存在しているハニカムフィルタに、このような有機成分が多く含まれていても、十分な酸素を含有する雰囲気において加熱された場合には、有機成分は、 $\text{CO}_2$ や $\text{H}_2\text{O}$ に分解されやすく、有毒ガスとはなりにく

い。しかし、排気ガス浄化用ハニカムフィルタは、酸素の少ないエンジンの排気ガスが排出される部分に設置されるため、有機成分は完全に分解されず、メタン、エタン、エチレン、プロピレン等の炭化水素やCO、NO<sub>x</sub>等の有毒ガスとして排出されやすく、大きな問題となる。

5       しかしながら、第二の本発明のハニカムフィルタは、比較的多くのシール材層が存在していても、これらに含まれている有機成分が非常に少ないため、第二の本発明のハニカムフィルタを実際に使用した際には、外部に排出される排気ガス中に含まれる上記炭化水素やCO、NO<sub>x</sub>等の有毒ガスは殆ど増加することがなく、ハニカムフィルタに含まれる有機成分に起因する問題は発生しない。

10       上記多孔質セラミック部材の材料としては特に限定されず、例えば、上述した第一の本発明のハニカムフィルタにおいて説明した柱状体の材料と同様の窒化物セラミック、炭化物セラミック及び酸化物セラミック等を挙げることができるが、これらのなかでは、耐熱性が大きく、機械的特性に優れ、かつ、熱伝導率も大きい炭化ケイ素が望ましい。なお、上述したセラミックに金属珪素を配合した珪素含有セラミック、珪素や珪酸塩化合物で結合されたセラミックも用いることができる。

また、上記多孔質セラミック部材の平均気孔径及び気孔率は特に限定されず、上述した第一の本発明のハニカムフィルタの平均気孔径及び気孔率と同様であることが望ましく、このような多孔質セラミック部材を製造する際に使用するセラミックの粒径も特に限定されず、上述した第一の本発明のハニカムフィルタと同様であることが望ましい。

また、第二の本発明のハニカムフィルタの多孔質セラミック部材には、上述した第一の本発明のハニカムフィルタと同様の排気ガス浄化用触媒が担持されていることが望ましい。

25       以上、説明した通り、第二の本発明のハニカムフィルタは、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が2%以上と、比較的多くのシール材層が存在しているが、その内部に存在する有機成分の割合 $V\beta$ が0.5重量%以下と非常に少ないため、第二の本発明の

ハニカムフィルタをエンジン等の内燃機関の排気通路に設置して使用した場合であっても、排出される排気ガス中の有機成分が増加することは殆どない。

- また、第二の本発明のハニカムフィルタに排気ガス浄化用触媒を担持させ、排気ガス中のパティキュレートを捕集するフィルタとして機能させるとともに、触媒コンバータとしても機能させると、第二の本発明のハニカムフィルタに僅かに含まれている有機成分が外部に排出された場合であっても、この有機成分は、確実に上記排気ガス浄化用触媒により分解、浄化される。

次に、上述した本発明のハニカムフィルタの製造方法の一例について図1～図4を参照しながら説明する。

- まず、第一の本発明のハニカムフィルタの製造方法について説明する。

第一の本発明のハニカムフィルタを製造するには、まず、上述したようなセラミック粉末に、バインダー及び分散媒液を加えて原料ペーストを調製する。

- 上記バインダーとしては特に限定されず、例えば、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリエチレングリコール、フェノール樹脂、エポキシ樹脂等を挙げることができる。

上記バインダーの配合量は、通常、セラミック粉末100重量部に対して、1～10重量部程度が望ましい。

上記分散媒液としては特に限定されず、例えば、ベンゼン等の有機溶媒；メタノール等のアルコール、水等を挙げることができる。

- 上記分散媒液は、混合組成物の粘度が一定範囲内となるように、適量配合される。

これらセラミック粉末、バインダー及び分散媒液は、アトライター等で混合された後、ニーダー等で十分に混練され、押出成形法等により、図1に示した柱状体15と略同形状の柱状のセラミック成形体を作製する。

- また、上記原料ペーストには、必要に応じて成形助剤を添加してもよい。

上記成形助剤としては特に限定されず、例えば、エチレングリコール、デキストリン、脂肪酸石鹼、ポリアルコール等を挙げることができる。

上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機等を用いて乾燥させた後、所定の

貫通孔に封口材を充填する封口処理を施し、再度、マイクロ波乾燥機等で乾燥処理を施す。

上記封口材としては特に限定されず、例えば、上記原料ペーストと同様のものを挙げることができる。

- 5 次に、上記封口処理を経たセラミック成形体に所定の条件で脱脂、焼成を行うことにより、多孔質セラミックからなる柱状体 15 を製造する。

次に、このようにして製造した柱状体 15 の外周にシール材層 14 の層を形成するシール材層形成工程を行う。

- 10 このシール材層形成工程においては、まず、柱状体 15 をその長手方向で軸支して回転させる。

柱状体 15 の回転速度は特に限定されないが、 $2 \sim 10 \text{ min}^{-1}$ であることが望ましい。

続いて、回転している柱状体 15 の外周にシール材ペーストを付着させ、シール材ペースト層を形成する。

- 15 上記シール材ペーストとしては、特に限定されず、例えば、上述したような無機バインダー、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子を含むものを使用することができる。

- 20 また、上記シール材ペースト中には、少量の水分や溶剤等を含んでいてもよいが、このような水分や溶剤等は、通常、シール材ペーストを塗布した後の加熱等により殆ど飛散する。

- このシール材ペースト中には、シール材ペーストを柔軟にし、流動性を付与して塗布しやすくするため、上記した無機繊維、無機バインダー、有機バインダー及び無機粒子のほかに、およそ総重量の 35～65 重量%程度の水分や他のアセトン、アルコール等の溶剤等が含まれていてもよく、このシール材ペーストの粘度は、 $15 \sim 25 \text{ Pa} \cdot \text{s}$  ( $1 \text{ 万} \sim 2 \text{ 万 cP}$ ) が望ましい。

また、上記第一の本発明のハニカムフィルタにおいて説明した通り、第一の本発明のハニカムフィルタは、上記貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S_a$  が 0.5% 以上である。

そのため、このシール材層形成工程において、ハニカムフィルタを製造した後の上記S $\alpha$ が0.5%以上となるように、上記シール材ペースト層の厚さを調整しておく必要がある。

- また、上記第一の本発明のハニカムフィルタにおいて説明した通り、第一の本  
5 発明のハニカムフィルタに含まれる有機成分は、具体的には、上記シール材ペーストに含まれる有機バインダーのことである。そのため、製造後のハニカムフィルタに含まれる有機成分の割合V $\alpha$ が0.5重量%以下となるように、予め上記シール材ペーストを構成する材料や、配合比等を調整しておくことが望ましい。

- なお、予め、上記シール材ペーストの材料や配合比等の調整を行わず、シール  
10 材層形成工程を行った後、例えば、500～700℃、10～90分程度の条件で加熱処理を施すことで、シール材層に存在する有機成分を分解、除去し、含まれる有機成分の割合V $\alpha$ が0.5重量%以下のハニカムフィルタとしてもよい。

- そして、このようにして形成したシール材ペースト層を120℃程度の温度で乾燥させることにより、水分を蒸発させてシール材層14とし、図1に示したよ  
15 うに、柱状体15の外周にシール材層14が形成された第一の本発明のハニカムフィルタ10の製造を終了する。

次に、第二の本発明のハニカムフィルタの製造方法について説明する。

第二の本発明のハニカムフィルタを製造するには、まず、セラミックブロック25となるセラミック積層体を作製する。

- 20 上記セラミック積層体は、多数の貫通孔31が隔壁33を隔てて長手方向に並設された角柱形状の多孔質セラミック部材30が、シール材層23を介して複数個結束された柱状構造である。

多孔質セラミック部材30を製造するには、まず、上述したようなセラミック粉末にバインダー及び分散媒液を加えて混合組成物を調製する。

- 25 上記混合組成物を調製する方法としては特に限定されず、例えば、上記第一の本発明のハニカムフィルタの製造方法で説明した原料ペーストと同様の方法を挙げることができる。

次に、上記混合組成物を、アトライター等で混合し、ニーダー等で十分に混練

した後、押出成形法等により、図3に示した多孔質セラミック部材30と略同形状の柱状の生成形体を作製する。

上記生成形体を、マイクロ波乾燥機等を用いて乾燥させた後、所定の貫通孔に封口材を充填する封口処理を施し、再度、マイクロ波乾燥機等で乾燥処理を施す。

- 5     上記封口材としては特に限定されず、例えば、上記混合組成物と同様のものを挙げる事ができる。

次に、上記封口処理を経た生成形体を、酸素含有雰囲気下、400～650℃程度に加熱することで脱脂し、バインダー等を揮散させるとともに、分解、消失させ、略セラミック粉末のみを残留させる。

- 10    そして、上記脱脂処理を施した後、窒素、アルゴン等の不活性ガス雰囲気下、1400～2200℃程度に加熱することで焼成し、セラミック粉末を焼結させて多孔質セラミック部材30を製造する。

- 次に、図4に示したように、上記セラミック積層体を作製するには、まず、多孔質セラミック部材30が斜めに傾斜した状態で積み上げることができるよう
- 15    、断面V字形状に構成された台40の上に、多孔質セラミック部材30を傾斜した状態で載置した後、上側を向いた2つの側面30a、30bに、シール材層23となるシール材ペーストを均一な厚さで塗布してペースト層41を形成し、このペースト層の上に、順次他の多孔質セラミック部材30を積層する工程を繰り返
- 20    し、所定の大きさの柱状のセラミック積層体を作製する。この際、セラミック積層体の4隅にあたる多孔質セラミック部材30には、四角柱形状の多孔質セラミック部材を2つに切断して作製した三角柱状の多孔質セラミック部材30cと、三角柱状の多孔質セラミック部材30cと同じ形状の樹脂部材42とを易剥離性の両面テープ等で貼り合わせてなるものを使用し、多孔質セラミック部材30の積層が完了した後に、セラミック積層体の4隅を構成する樹脂部材42を全
- 25    て取り除くことによって、セラミック積層体を断面多角柱状にしてもよい。これにより、セラミック積層体の外周部を切削加工してセラミックブロックを作製した後に廃棄されることとなる多孔質セラミック部材からなる廃棄物の量を減らすことができる。

上記図 4 に示した方法以外であっても、断面多角柱状のセラミック積層体を作製する方法としては、作製するハニカムフィルタの形状に合わせて、例えば、4 隅の多孔質セラミック部材を省略する方法、三角柱状の多孔質セラミック部材を組み合わせる方法等を用いることができる。また、もちろん四角柱状のセラミック積層体を作製してもよい。

そして、このセラミック積層体を 50～100℃、1 時間程度の条件で加熱して上記ペースト層を乾燥、固化させてシール材層 23 とし、その後、例えば、ダイヤモンドカッター等を用いて、その外周部を図 2 に示したような形状に切削することで、セラミックブロック 25 を作製する。

- 10    なお、シール材層 23 となるシール材ペーストを構成する材料としては特に限定されず、例えば、上記第一の本発明のハニカムフィルタの製造方法で説明したシール材ペーストと同様の材料を挙げることができる。

- 15    次に、このようにして作製したセラミックブロック 25 の周囲にシール材層 24 の層を形成するシール材形成工程を行うことで、セラミックブロック 25 の外周にシール材層 24 が形成された第二の本発明のハニカムフィルタ 20 の製造を終了する。

なお、このシール材層形成工程としては特に限定されず、例えば、上記第一の本発明のハニカムフィルタの製造方法において説明したシール材層形成工程と同様の工程を挙げることができる。

- 20    また、上記第二の本発明のハニカムフィルタにおいて説明した通り、第二の本発明のハニカムフィルタは、上記貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 2% 以上である。

- 25    そのため、上記第二の本発明のハニカムフィルタの製造方法において、セラミック積層体を作製する際、及び、シール材層形成工程を行う際に、ハニカムフィルタを製造した後の上記  $S\beta$  が 2% 以上となるように、上記シール材ペースト層の厚さを調整しておく必要がある。

また、上記第二の本発明のハニカムフィルタにおいて説明した通り、第二の本発明のハニカムフィルタに含まれる有機成分は、具体的には、上記シール材ペー

ストに含まれる有機バインダーのことである。そのため、製造後のハニカムフィルタに含まれる有機成分の割合 $V\beta$ が0.5重量%以下となるように、予め上記シール材ペーストを構成する材料や、配合比等を調製しておくことが望ましい。

- 5     なお、予め、上記シール材ペーストの材料や配合比等の調製を行わず、シール材層形成工程を行った後、例えば、500～700℃、10～90分程度の条件で加熱処理を施すことで、シール材層に存在する有機成分を分解、除去し、含まれる有機成分の割合 $V\beta$ が0.5重量%以下のハニカムフィルタとしてもよい。

- 10     また、このようにして製造した本発明のハニカムフィルタには、排気ガス浄化用触媒を担持させてもよい。このように排気ガス浄化用触媒を担持させた本発明のハニカムフィルタは、排気ガス中のパティキュレートを捕集するフィルタとして機能するとともに、排気ガス中のHC、CO、NO<sub>x</sub>等の有害成分や本発明のハニカムフィルタに僅かに含まれている有機成分から生じるガスを浄化する触媒コンバータとして機能する。

- 15     発明を実施するための最良の形態

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

#### (実施例1)

- 20     (1) 平均粒径10 $\mu$ mのタルク40重量部、平均粒径9 $\mu$ mのカオリン10重量部、平均粒径9.5 $\mu$ mのアルミナ17重量部、平均粒径5 $\mu$ mの水酸化アルミニウム16重量部、平均粒径10 $\mu$ mのシリカ15重量部、成形助剤(エチレングリコール)6重量部、水16重量部加えて混練して原料ペーストを調製した。

- 25     次に、上記原料ペーストを押出成形機に充填し、押出速度10cm/分にて図1に示したハニカムフィルタ10と略同形状のセラミック成形体を作製し、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させ、上記原料ペーストと同様の組成のペーストを所定の貫通孔に充填した後、再び乾燥機を用いて乾燥させた後、400℃で脱脂し、常圧のアルゴン雰囲気下1400℃、3時間で焼成



を行うことにより、図1に示したような、コージェライトからなる円柱形状の柱状体を製造した。

- (2) 繊維長0.2mmのアルミナファイバー30重量%、平均粒径0.6 $\mu$ mの炭化珪素粒子21重量%、シリカゾル15重量%、カルボキシメチルセルロース5.6重量%、及び、水28.4重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用いて上記柱状体の外周にシール材ペースト層を形成した。

そして、このシール材ペースト層を120℃で乾燥してシール材層とすることで、図1に示したような、シール材層の厚さが0.5mm、端面の直径が143.8mmで円柱形状のハニカム構造体を製造した。

- 10 製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は1.4%であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は0.60重量%であった。

- そして、上記ハニカム構造体を酸素雰囲気下700℃、90分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S_{\alpha}$ が1.4%で、有機成分の割合 $V_{\alpha}$ が0.05重量%のハニカムフィルタを製造した。

#### (実施例2)

まず、実施例1の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

- 20 そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下600℃、60分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S_{\alpha}$ が1.4%で、有機成分の割合 $V_{\alpha}$ が0.10重量%のハニカムフィルタを製造した。

#### (実施例3)

まず、実施例1の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

- 25 そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、30分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S_{\alpha}$ が1.4%で、有機成分の割合 $V_{\alpha}$ が0.20重量%のハニカムフィルタを製造した。

## (実施例 4)

まず、実施例 1 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500℃、10 分の条件で加熱すること、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 1.4% で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.50 重量% のハニカムフィルタを製造した。

## (比較例 1)

(1) 実施例 1 の (1) と同様にして柱状体を製造した。

(2) 実施例 1 の (2) で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用いて上記柱状体の外周にシール材ペースト層を形成した。

そして、このシール材ペースト層を 120℃ で乾燥して、図 1 に示したような、シール材層の厚さが 0.5 mm、端面の直径が 143.8 mm で円柱形状のハニカムフィルタを製造した。

比較例 1 で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  は 1.4% であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  は 0.60 重量% であった。

## (評価試験 1)

実施例 1 ~ 4 及び比較例 1 で製造したハニカムフィルタをエンジンの排気通路に設置し、エンジンを無負荷状態で、最高回転数 (3700 rpm、0 Nm) で運転した。

このとき、ハニカムフィルタに導入される前の排気ガスに含まれる HC の量を A とし、ハニカムフィルタを通過して外部に排出された排気ガスに含まれる HC の量を B とした場合、排気ガスが各ハニカムフィルタを通過することで増加した HC の増加率を下記の式 (1) により計算した。

$$\text{HC の増加率 (\%)} = 100 \times (B - A) / A \cdots (1)$$

## (評価試験 2)

実施例 1 ～ 4 及び比較例 1 で製造したハニカムフィルタに、触媒を担持させるための下地となるアルミナ層を 10 g/L の割合で付与し、排気ガス浄化用触媒として白金を 2 g/L の割合で担持させ、その後、エンジンの排気通路に設置し、エンジンを無負荷状態で、最高回転数（3700 rpm、0 Nm）にして運転した。

このとき、ハニカムフィルタに導入される前の排気ガスに含まれる HC の量を A とし、ハニカムフィルタを通過して外部に排出された排気ガスに含まれる HC の量を B' とした場合、排気ガスが各ハニカムフィルタを通過することで増加した HC の増加率を下記の式（2）により計算した。

$$\text{HC の増加率 (\%)} = 100 \times (B' - A) / A \cdots (2)$$

それぞれの結果を下記表 1、及び、図 5 に示す。

なお、図 5 は、実施例 1 ～ 4 及び比較例 1 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示すグラフである。

表 1

	Sα (%)	Vα (重量%)	HC 増加率 (%)	
			評価試験 1	評価試験 2
実施例 1	1.4	0.05	8	1
実施例 2	1.4	0.10	10	2
実施例 3	1.4	0.20	12	8
実施例 4	1.4	0.50	15	10
比較例 1	1.4	0.60	40	35

評価試験 1 の結果より、実施例 1 ～ 4 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率は 8 ～ 15 % と非常に小さかったが、比較例 1 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率は 40 % と、実施例 1 ～ 4 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率よりも非常に大きくなっていた。

また、評価試験 2 の結果より、実施例 1 ～ 4 に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおける HC の増加率は 1 ～ 10 % と非常に小さかったが、比較例 1 に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおける HC の増加率は 35 % と、実施例 1 ～ 4 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率よりも非常に大きくなってい

た。

(実施例 5)

(1) 実施例 1 の (1) と同様にして柱状体を製造した。

- 5      (2) 繊維長 0.2 mm のアルミナファイバー 27 重量%、平均粒径 0.6  $\mu$ m の炭化珪素粒子 19 重量%、シリカゾル 14 重量%、カルボキシメチルセルロース 13.2 重量%、及び、水 26.8 重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用いて上記柱状体の外周に、厚さ 0.2 mm のシール材層を形成したほかは、実施例 1 の (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

- 10      製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は 0.6 % であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は 0.60 重量%であった。

- そして、上記ハニカム構造体を酸素含有雰囲気下 700℃、90 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、  
15      シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.6 % で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.05 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例 6)

まず、実施例 5 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

- そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 600℃、60 分の条件で加熱す  
20      ることで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.6 % で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.10 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例 7)

まず、実施例 5 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

- 25      そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500℃、30 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.6 % で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.20 重量%のハニカムフィルタを製造した。

## (実施例 8)

まず、実施例 5 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500℃、10 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.6% で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.50 重量% のハニカムフィルタを製造した。

## (比較例 2)

(1) 実施例 5 の (1) と同様にして柱状体を製造した。

(2) 実施例 5 の (2) で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用いて上記柱状体の外周にシール材ペースト層を形成した。

そして、このシール材ペースト層を 120℃ で乾燥して、図 1 に示したような、シール材層の厚さが 0.2 mm、端面の直径が 143.8 mm で円柱形状のハニカムフィルタを製造した。

比較例 2 で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  は 0.6% であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  は 0.60 重量% であった。

実施例 5 ～ 8 及び比較例 2 に係るハニカムフィルタについても、上記実施例 1 ～ 4 及び比較例 1 について行った評価試験 1 及び 2 と同様の評価試験を行った。

それぞれの結果を下記表 2、及び、図 6 に示す。

なお、図 6 は、実施例 5 ～ 8 及び比較例 2 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示すグラフである。

表 2

	S $\alpha$ (%)	V $\alpha$ (重量%)	HC増加率 (%)	
			評価試験1	評価試験2
実施例5	0.6	0.05	6	1
実施例6	0.6	0.10	8	1.5
実施例7	0.6	0.20	10	6
実施例8	0.6	0.50	13	8
比較例2	0.6	0.60	30	25

評価試験1の結果より、実施例5～8に係るハニカムフィルタにおけるHCの増加率は6～13%と非常に小さかったが、比較例2に係るハニカムフィルタにおけるHCの増加率は30%と、実施例5～8に係るハニカムフィルタにおけるHCの増加率よりも非常に大きくなっていた。

また、評価試験2の結果より、実施例5～8に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおけるHCの増加率は1～8%と非常に小さかったが、比較例2に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおけるHCの増加率は25%と、実施例5～8に係るハニカムフィルタのHCの増加率よりも非常に大きくなっていた。

#### (実施例9)

- (1) 実施例1の(1)と同様にして柱状体を製造した。
- (2) 繊維長0.2mmのアルミナファイバー26重量%、平均粒径0.6 $\mu$ mの炭化珪素粒子19重量%、シリカゾル14重量%、カルボキシメチルセルロース15.8重量%、及び、水25.2重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用いて上記柱状体の外周に、厚さ0.17mmのシール材層を形成したほかは、実施例1の(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。
- 製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は0.5%であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は0.60重量%であった。

そして、上記ハニカム構造体を酸素含有雰囲気下700℃、90分の条件で加

熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.5% で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.05 重量% のハニカムフィルタを製造した。

(実施例 10)

- 5     まず、実施例 9 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。  
      そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 600℃、60 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.5% で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.10 重量% のハニカムフィルタを製造した。

- 10    (実施例 11)

- まず、実施例 9 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。  
      そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500℃、30 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.5% で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.20 重量% のハニカムフィルタを製造した。

(実施例 12)

- まず、実施例 9 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。  
      そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500℃、10 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.5% で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.50 重量% のハニカムフィルタを製造した。

(比較例 3)

- (1) 実施例 9 の (1) と同様にして柱状体を製造した。  
      (2) 実施例 9 の (2) で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペースト  
25    を用いて上記柱状体の外周にシール材ペースト層を形成した。

      そして、このシール材ペースト層を 120℃ で乾燥して、図 1 に示したような、シール材層の厚さが 0.17 mm、端面の直径が 143.8 mm で円柱形状のハニカムフィルタを製造した。

比較例 3 で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\alpha$  は 0.5 % であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\alpha$  は 0.60 重量 % であった。

5

実施例 9 ～ 12 及び比較例 3 に係るハニカムフィルタについても、上記実施例 1 ～ 4 及び比較例 1 について行った評価試験 1 及び 2 と同様の評価試験を行った。それぞれの結果を下記表 3、及び、図 7 に示す。

10 なお、図 7 は、実施例 9 ～ 12 及び比較例 3 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示すグラフである。

表 3

	$S\alpha$ (%)	$V\alpha$ (重量%)	HC増加率(%)	
			評価試験1	評価試験2
実施例9	0.5	0.05	4	0.5
15 実施例10	0.5	0.10	6	1
実施例11	0.5	0.20	8	6
実施例12	0.5	0.50	10	8
比較例3	0.5	0.60	25	20

20 評価試験 1 の結果より、実施例 9 ～ 12 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率は 4 ～ 10 % と非常に小さかったが、比較例 3 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率は 25 % と、実施例 9 ～ 12 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率よりも非常に大きくなっていた。

また、評価試験 2 の結果より、実施例 9 ～ 12 に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおける HC の増加率は 0.5 ～ 8 % と非常に小さかったが、比較例 3  
25 に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおける HC の増加率は 20 % と、実施例 9 ～ 12 に係るハニカムフィルタの HC の増加率よりも非常に大きくなっていた。



## (比較例 4)

(1) 実施例 1 の (1) と同様にして柱状体を製造した。

(2) 繊維長 0.2 mm のアルミナファイバー 23 重量%、平均粒径 0.6  $\mu$ m の炭化珪素粒子 16 重量%、シリカゾル 12 重量%、カルボキシメチルセルロース 26.3 重量%、及び、水 22.7 重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用いて上記柱状体の外周に、厚さ 0.1 mm のシール材層を形成したほかは、実施例 1 の (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は 0.3 % であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は 0.60 重量%であった。

そして、上記ハニカム構造体を酸素含有雰囲気下 700 °C、90 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.3 % で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.05 重量%のハニカムフィルタを製造した。

## 15 (比較例 5)

まず、比較例 4 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 600 °C、60 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.3 % で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.10 重量%のハニカムフィルタを製造した。

## 20 (比較例 6)

まず、比較例 4 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500 °C、30 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.3 % で、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.20 重量%のハニカムフィルタを製造した。

## 25 (比較例 7)

まず、実施例 5 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、10分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\alpha$ が0.3%で、有機成分の割合 $V\alpha$ が0.50重量%のハニカムフィルタを製造した。

5 (比較例8)

(1) 比較例4の(1)と同様にして柱状体を製造した。

(2) 比較例4の(2)で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用いて上記柱状体の外周にシール材ペースト層を形成した。

そして、このシール材ペースト層を120℃で乾燥して、図1に示したような、  
10 シール材層の厚さが0.1mm、端面の直径が143.8mmで円柱形状のハニカムフィルタを製造した。

比較例8で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合 $S\alpha$ は0.3%であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合 $V\alpha$ は0.60重量%であった。  
15

比較例4～8で製造したハニカムフィルタについても、上記実施例1～4及び比較例1について行った評価試験1及び2と同様の評価試験を行った。

それぞれの結果を下記表4、及び、図8に示す。

20 なお、図8は、比較例4～8に係るハニカムフィルタの、評価試験1及び評価試験2の結果を示すグラフである。

表4

	$S\alpha$ (%)	$V\alpha$ (重量%)	HC増加率(%)	
			評価試験1	評価試験2
比較例4	0.3	0.05	0.8	0
比較例5	0.3	0.10	1	0
比較例6	0.3	0.20	3	1
比較例7	0.3	0.50	5	3
比較例8	0.3	0.60	8	5

評価試験 1 の結果より、比較例 4～8 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率は 0.8～8% と非常に小さく、また、評価試験 2 の結果より、比較例 4～8 に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおける HC の増加率も 0～5% と、非常に小さくなっていた。

5

このように、実施例 1～12、及び、比較例 1～8 に係るハニカムフィルタは、柱状体の外周にのみシール材層が形成された構造であり、実施例 1～12、及び、比較例 1～3 に係るハニカムフィルタは、いずれもハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層

10 が占める割合  $S_{\alpha}$  が 0.5% 以上である。

評価試験 1 の結果より、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.50 重量% 以下である実施例 1～12 に係るハニカムフィルタでは、シール材層から排出される有機成分の量が少なくなり、排出される排気ガス中の HC は殆ど増加することがなく、また、評価試験 2 の結果より、このようなハニカムフィルタに触媒を担持させると、外部に排出される HC の増加率を非常に小さくすることができる。

15

一方、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.50 重量% を超える比較例 1～3 に係るハニカムフィルタでは、シール材層から排出される有機成分の量が多くなり、排出される排気ガス中の HC の増加率が非常に大きくなっており、また、評価試験 2 の結果より、このようなハニカムフィルタに触媒を担持させると、外部に排出される HC の増加率は若干低くなるものの、実施例 1～12 に係るハニカムフィルタに比べて非常に大きなものとなっていた。

20

また、比較例 4～8 に係るハニカムフィルタの評価試験 1 の結果より、ハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める割合  $S_{\alpha}$  が 0.5% 未満であると、例えば、有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.50 重量% を超えるものであっても、上記シール材層から排出される有機成分の量が少なくなり、排出される排気ガス中の HC は殆ど増加しない。

25

即ち、上記  $S_{\alpha}$  が 0.5% 未満であるハニカムフィルタでは、例えば、シール材層に存在する有機成分の割合が多くなっても、比較例 1～3 に示したような、排

出される排気ガス中のHC量が増加するという問題が生じない。

また、評価試験2の結果より、このようなハニカムフィルタに触媒を担持させると、外部に排出されるHCの増加率を非常に小さくすることができる。

5 (実施例13)

(1) 平均粒径 $5\mu\text{m}$ の $\alpha$ 型炭化珪素粉末60重量%と、平均粒径 $0.5\mu\text{m}$ の $\beta$ 型炭化珪素粉末40重量%とを湿式混合し、得られた混合物100重量部に対して、有機バインダー(メチルセルロース)を5重量部、水を10重量部加えて混練して混練物を得た。次に、上記混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練した後、押出成形を行い、生成形体を作製した。

次に、上記生成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させ、上記生成形体と同様の組成のペーストを所定の貫通孔に充填した後、再び乾燥機を用いて乾燥させた後、 $400^\circ\text{C}$ で脱脂し、常圧のアルゴン雰囲気下 $2200^\circ\text{C}$ 、3時間で焼成を行うことにより、図3に示したような、その大きさが $34\text{mm}\times 34\text{mm}\times 300\text{mm}$ で、貫通孔の数が $31\text{個}/\text{cm}^2$ 、隔壁の厚さが $0.3\text{mm}$ の炭化珪素焼結体からなる多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 繊維長 $0.2\text{mm}$ のアルミナファイバー31重量%、平均粒径 $0.6\mu\text{m}$ の炭化珪素粒子22重量%、シリカゾル16重量%、カルボキシメチルセルロース1重量%、及び、水30重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用いて上記多孔質セラミック部材を、図4を用いて説明した方法により多数結束させ、続いて、ダイヤモンドカッターを用いて切断することにより、図2に示したような円柱形状のセラミックブロックを作製した。

次に、上記シール材ペーストを用いて、上記セラミックブロックの外周部にシール材ペースト層を形成した。そして、このシール材ペースト層を $120^\circ\text{C}$ で乾燥して、図2に示したハニカムフィルタ20のような、多孔質セラミック部材の間、及び、セラミックブロックの外周に形成されたシール材層の厚さが $1.0\text{mm}$ 、直径が $145.8\text{mm}$ で円柱形状のハニカム構造体を製造した。

製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断

面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は7.4%であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は0.60重量%であった。

そして、上記ハニカム構造体を酸素雰囲気下700℃、90分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が7.4%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.05重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例14)

まず、実施例13の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下600℃、60分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が7.4%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.10重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例15)

まず、実施例13の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、30分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が7.4%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.20重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例16)

まず、実施例13の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、10分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が7.4%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.50重量%のハニカムフィルタを製造した。

(比較例9)

(1) 実施例13の(1)と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 実施例13の(2)で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用いて上記多孔質セラミック部材を、図4を用いて説明した方法により多数

結束させ、続いて、ダイヤモンドカッターを用いて切断することにより、図 2 に示したような円柱形状のセラミックブロックを作製した。

次に、上記シール材ペーストを用いて、上記セラミックブロックの外周にシール材ペースト層を形成した。そして、このシール材ペースト層を 120℃で乾燥して、図 2 に示したハニカムフィルタ 20 のような、多孔質セラミック部材の間、及び、セラミックブロックの外周に形成されたシール材層の厚さが 1.0 mm、直径が 145.8 mm で円柱形状のハニカムフィルタを製造した。

比較例 9 で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  は 7.4% であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\beta$  は 0.60 重量%であった。

実施例 13～16 及び比較例 9 に係るハニカムフィルタについても、上記実施例 1～4 及び比較例 1 について行った評価試験 1 及び 2 と同様の評価試験を行った。

それぞれの結果を下記表 5、及び、図 9 に示す。

なお、図 9 は、実施例 13～16 及び比較例 9 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示すグラフである。

表 5

	$S\beta$ (%)	$V\beta$ (重量%)	HC増加率(%)	
			評価試験1	評価試験2
実施例13	7.4	0.05	8	1
実施例14	7.4	0.10	10	2
実施例15	7.4	0.20	12	8
実施例16	7.4	0.50	15	10
比較例9	7.4	0.60	40	35

評価試験 1 の結果より、実施例 13～16 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率は 8～15% と非常に小さかったが、比較例 9 に係るハニカムフィル

タにおけるHCの増加率は40%と、実施例13～16に係るハニカムフィルタにおけるHCの増加率よりも非常に大きくなっていた。

また、評価試験2の結果より、実施例13～16に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおけるHCの増加率は1～10%と非常に小さかったが、比較例9  
5 に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおけるHCの増加率は35%と、実施例13～16に係るハニカムフィルタにおけるHCの増加率よりも非常に大きくなっていた。

(実施例17)

10 (1) 実施例13の(1)と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 繊維長0.2mmのアルミナファイバー31重量%、平均粒径0.6 $\mu$ mの炭化珪素粒子22重量%、シリカゾル16重量%、カルボキシメチルセルロース2重量%、及び、水29重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用い、シール材層の厚さを0.5mmとしたほかは、実施例13の(2)と同様にしてハ  
15 ニカム構造体を製造した。

製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は3.8%であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は0.60重量%であった。

そして、上記ハニカム構造体を酸素雰囲気下700℃、90分の条件で加熱すること  
20 ることで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が3.8%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.05重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例18)

まず、実施例17の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。  
25 そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下600℃、60分の条件で加熱すること  
ることで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が3.8%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.10重量%のハニカムフィルタを製造した。

## (実施例 19)

まず、実施例 17 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500℃、30 分の条件で加熱すること、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 3.8% で、有機成分の割合  $V\beta$  が 0.20 重量% のハニカムフィルタを製造した。

## (実施例 20)

まず、実施例 13 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500℃、10 分の条件で加熱すること、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 3.8% で、有機成分の割合  $V\beta$  が 0.50 重量% のハニカムフィルタを製造した。

## (比較例 10)

(1) 実施例 17 の (1) と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 実施例 17 の (2) で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用い、シール材層の厚さを 0.5 mm としたほかは、比較例 9 の (2) と同様にしてハニカムフィルタを製造した。

比較例 10 で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  は 4.0% であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\beta$  は 0.60 重量% であった。

実施例 17～20 及び比較例 10 に係るハニカムフィルタについても、上記実施例 1～4 及び比較例 1 について行った評価試験 1 及び 2 と同様の評価試験を行った。

それぞれの結果を下記表 6、及び、図 10 に示す。

なお、図 10 は、実施例 17～20 及び比較例 10 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示すグラフである。



表 6

	S $\beta$ (%)	V $\beta$ (重量%)	HC増加率(%)	
			評価試験1	評価試験2
実施例17	3.8	0.05	6	1
実施例18	3.8	0.10	8	1.5
実施例19	3.8	0.20	10	6
実施例20	3.8	0.50	13	8
比較例10	3.8	0.60	30	25

評価試験1の結果より、実施例17～20に係るハニカムフィルタにおけるH  
Cの増加率は6～13%と非常に小さかったが、比較例10に係るハニカムフィ  
ルタにおけるHCの増加率は30%と、実施例17～20に係るハニカムフィル  
タにおけるHCの増加率よりも非常に大きくなっていた。

また、評価試験2の結果より、実施例17～20に係る触媒を担持したハニカ  
ムフィルタにおけるHCの増加率は1～8%と非常に小さかったが、比較例10  
に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおけるHCの増加率は25%と、実施  
例17～20に係るハニカムフィルタのHCの増加率よりも非常に大きくなっ  
ていた。

#### (実施例21)

(1) 実施例13の(1)と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 繊維長0.2mmのアルミナファイバー30重量%、平均粒径0.6 $\mu$   
mの炭化珪素粒子21重量%、シリカゾル16重量%、カルボキシメチルセルロ  
ース4重量%、及び、水29重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用い、シ  
ール材層の厚さを0.25mmとしたほかは、実施例13の(2)と同様にして  
ハニカム構造体を製造した。

製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断  
面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は2.0%であり、上  
記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は0.60重量%であった。

そして、上記ハニカム構造体を酸素雰囲気下700℃、90分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が1.9%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.05重量%のハニカムフィルタを製造した。

5 (実施例22)

まず、実施例21の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下600℃、60分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が1.9%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.10重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例23)

まず、実施例21の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、30分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が1.9%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.20重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例24)

まず、実施例21の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、10分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が1.9%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.50重量%のハニカムフィルタを製造した。

(比較例11)

(1) 実施例21の(1)と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

25 (2) 実施例21の(2)で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用い、シール材層の厚さを0.25mmとしたほかは、比較例9の(2)と同様にしてハニカムフィルタを製造した。

比較例11で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記

貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  は 2.0%であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\beta$  は 0.60 重量%であった。

- 5 実施例 21～24 及び比較例 11 に係るハニカムフィルタについても、上記実施例 1～4 及び比較例 1 について行った評価試験 1 及び 2 と同様の評価試験を行った。

それぞれの結果を下記表 7、及び、図 11 に示す。

- 10 なお、図 11 は、実施例 21～24 及び比較例 11 に係るハニカムフィルタの、評価試験 1 及び評価試験 2 の結果を示すグラフである。

表 7

	$S\beta$ (%)	$V\beta$ (重量%)	HC増加率(%)	
			評価試験1	評価試験2
15 実施例21	1.9	0.05	4	0.5
実施例22	1.9	0.10	6	1
実施例23	1.9	0.20	8	6
実施例24	1.9	0.50	10	8
比較例11	1.9	0.60	25	20

- 20 評価試験 1 の結果より、実施例 21～24 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率は 4～10%と非常に小さかったが、比較例 11 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率は 25%と、実施例 21～24 に係るハニカムフィルタにおける HC の増加率よりも非常に大きくなっていた。

- 25 また、評価試験 2 の結果より、実施例 21～24 に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおける HC の増加率は 0.5～8%と非常に小さかったが、比較例 11 に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおける HC の増加率は 20%と、実施例 21～24 に係るハニカムフィルタの HC の増加率よりも非常に大きくなっていた。

## (比較例 1 2)

(1) 実施例 1 3 の (1) と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 繊維長 0. 2 mm のアルミナファイバー 2 8 重量%、平均粒径 0. 6  $\mu$  m の炭化珪素粒子 2 0 重量%、シリカゾル 1 5 重量%、カルボキシメチルセルロース 1 0 重量%、及び、水 2 7 重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用い、  
5 シール材層の厚さを 0. 1 mm としたほかは、実施例 1 3 の (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は 0. 8 % であり、上  
10 記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は 0. 6 0 重量%であった。

そして、上記ハニカム構造体を酸素雰囲気下 7 0 0 °C、9 0 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  が 0. 8 % で、有機成分の割合  $V \beta$  が 0. 0 5 重量%のハニカムフィルタを製造した。

## 15 (比較例 1 3)

まず、比較例 1 2 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 6 0 0 °C、6 0 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  が 0. 8 % で、有機成分の割合  $V \beta$  が 0. 1 0 重量%のハニカムフィルタを製造した。  
20

## (比較例 1 4)

まず、比較例 1 2 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 5 0 0 °C、3 0 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  が 0. 8 % で、有機成分の割合  $V \beta$  が 0. 2 0 重量%のハニカムフィルタを製造した。  
25

## (比較例 1 5)

まず、比較例 1 2 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、10分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が0.8%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.50重量%のハニカムフィルタを製造した。

5 (比較例16)

(1) 実施例13の(1)と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 比較例12の(2)で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用い、シール材層の厚さを0.1mmとしたほかは、比較例9の(2)と同様にしてハニカムフィルタを製造した。

10 比較例16で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ は0.8%であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合 $V\beta$ は0.60重量%であった。

15 比較例12～16で製造したハニカムフィルタについても、上記実施例1～4及び比較例1について行った評価試験1及び2と同様の評価試験を行った。

それぞれの結果を下記表8、及び、図12に示す。

なお、図12は、比較例12～16に係るハニカムフィルタの、評価試験1及び評価試験2の結果を示すグラフである。

20 表8

	$S\beta$ (%)	$V\beta$ (重量%)	HC増加率(%)	
			評価試験1	評価試験2
比較例12	0.8	0.05	0.8	0
比較例13	0.8	0.10	1	0
比較例14	0.8	0.20	3	1
比較例15	0.8	0.50	5	3
比較例16	0.8	0.60	8	5

25 評価試験1の結果より、比較例12～16に係るハニカムフィルタにおけるH

Cの増加率は0.8～8%と非常に小さく、また、評価試験2の結果より、比較例12～16に係る触媒を担持したハニカムフィルタにおけるHCの増加率も0～5%と、非常に小さくなっていた。

- 5      このように、実施例13～24、及び、比較例9～16に係るハニカムフィルタは、多孔質セラミック部材の間、及び、セラミックブロックの外周にシール材層が形成された構造であり、実施例13～24、及び、比較例9～11に係るハニカムフィルタは、いずれもハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める割合Sβが2  
10   %以上である。

- 評価試験1の結果より、有機成分の割合Vβが0.50重量%以下である実施例13～24に係るハニカムフィルタでは、シール材層から排出される有機成分の量が少なくなり、排出される排気ガス中のHCは殆ど増加することがなく、また、評価試験2の結果より、このようなハニカムフィルタに触媒を担持させると、  
15   外部に排出されるHCの増加率を非常に小さくすることができる。

- 一方、有機成分の割合Vβが0.50重量%を超える比較例9～11に係るハニカムフィルタでは、シール材層から排出される有機成分の量が多くなり、排出される排気ガス中のHCの増加率が非常に大きくなっており、また、評価試験2の結果より、このようなハニカムフィルタに触媒を担持させると、外部に排出さ  
20   れるHCの増加率は若干低くなるものの、実施例13～24に係るハニカムフィルタに比べて非常に大きなものとなっていた。

- また、比較例12～16に係るハニカムフィルタの評価試験1の結果より、ハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める割合Sβが2%未満であると、例え、有機成分の  
25   割合Vβが0.5重量%を超えるものであっても、上記シール材層から排出される有機成分の量が少なくなり、排出される排気ガス中のHCは殆ど増加しない。

即ち、上記Sβが2%未満であるハニカムフィルタでは、例え、シール材層に存在する有機成分の割合が多くなっても、比較例9～12に示したような、排出

される排気ガス中のHC量が増加するという問題が生じない。

また、評価試験2の結果より、このようなハニカムフィルタに触媒を担持させると、外部に排出されるHCの増加率を非常に小さくすることができる。

5 (実施例25)

(1) 平均粒径 $20\mu\text{m}$ の $\alpha$ 型炭化珪素粉末60重量%と、平均粒径 $1.0\mu\text{m}$ の珪素粉末40重量%とを湿式混合し、得られた混合物100重量部に対して、有機バインダー(メチルセルロース)を5重量部、水を10重量部加えて混練して混練物を得た。次に、上記混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練した後、押し出し成形を行い、生成形体を作製した。

次に、上記生成形体を、マイクロ波乾燥機を用いて乾燥させ、上記生成形体と同様の組成のペーストを所定の貫通孔に充填した後、再び乾燥機を用いて乾燥させた後、 $400^{\circ}\text{C}$ で脱脂し、常圧のアルゴン雰囲気下 $1600^{\circ}\text{C}$ 、2時間で焼成を行うことにより、図3に示したような、その大きさが $34\text{mm}\times 34\text{mm}\times 300\text{mm}$ で、貫通孔の数が $31\text{個}/\text{cm}^2$ 、隔壁の厚さが $0.3\text{mm}$ の炭化珪素-珪素焼結体からなる多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 繊維長 $0.2\text{mm}$ のアルミナファイバー31重量%、平均粒径 $0.6\mu\text{m}$ の炭化珪素粒子22重量%、シリカゾル16重量%、カルボキシメチルセルロース1重量%、及び、水30重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用いて上記多孔質セラミック部材を、図4を用いて説明した方法により多数結束させ、続いて、ダイヤモンドカッターを用いて切断することにより、図2に示したような円柱形状のセラミックブロックを作製した。

次に、上記シール材ペーストを用いて、上記セラミックブロックの外周部にシール材ペースト層を形成した。そして、このシール材ペースト層を $120^{\circ}\text{C}$ で乾燥して、図2に示したハニカムフィルタ20のような、多孔質セラミック部材の間、及び、セラミックブロックの外周に形成されたシール材層の厚さが $1.0\text{mm}$ 、直径が $145.8\text{mm}$ で円柱形状のハニカム構造体を製造した。

製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断

面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は7.4%であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は0.60重量%であった。

そして、上記ハニカム構造体を酸素雰囲気下700℃、90分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が7.4%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.05重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例26)

まず、実施例25の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下600℃、60分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が7.4%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.10重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例27)

まず、実施例25の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、30分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が7.4%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.20重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例28)

まず、実施例25の(1)及び(2)と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、10分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が7.4%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.50重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例29)

(1) 実施例25の(1)と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 繊維長0.2mmのアルミナファイバー31重量%、平均粒径0.6 $\mu$ mの炭化珪素粒子22重量%、シリカゾル16重量%、カルボキシメチルセルロ



ース 2 重量%、及び、水 29 重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用い、シール材層の厚さを 0.5 mm としたほかは、実施例 25 の (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

5 製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は 3.8 % であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は 0.60 重量%であった。

そして、上記ハニカム構造体を酸素雰囲気下 700 °C、90 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 3.8 % で、有機成分の割合  $V\beta$  が 0.05 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例 30)

まず、実施例 29 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 600 °C、60 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 3.8 % で、有機成分の割合  $V\beta$  が 0.10 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例 31)

まず、実施例 29 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500 °C、30 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 3.8 % で、有機成分の割合  $V\beta$  が 0.20 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例 32)

まず、実施例 29 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

25 そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 500 °C、10 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 3.8 % で、有機成分の割合  $V\beta$  が 0.50 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例 3 3)

(1) 実施例 2 5 の (1) と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 繊維長 0. 2 mm のアルミナファイバー 3 0 重量%、平均粒径 0. 6  $\mu$  m の炭化珪素粒子 2 1 重量%、シリカゾル 1 6 重量%、カルボキシメチルセルロース 4 重量%、及び、水 2 9 重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用い、シール材層の厚さを 0. 2 5 mm としたほかは、実施例 2 5 の (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は 2. 0 % であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は 0. 6 0 重量%であった。

そして、上記ハニカム構造体を酸素雰囲気下 7 0 0  $^{\circ}$ C、9 0 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  が 1. 9 % で、有機成分の割合  $V \beta$  が 0. 0 5 重量%のハニカムフィルタを製造した。

15 (実施例 3 4)

まず、実施例 3 3 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 6 0 0  $^{\circ}$ C、6 0 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  が 1. 9 % で、有機成分の割合  $V \beta$  が 0. 1 0 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(実施例 3 5)

まず、実施例 3 3 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 5 0 0  $^{\circ}$ C、3 0 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  が 1. 9 % で、有機成分の割合  $V \beta$  が 0. 2 0 重量%のハニカムフィルタを製造した。

25 (実施例 3 6)

まず、実施例 3 3 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下500℃、10分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ が1.9%で、有機成分の割合 $V\beta$ が0.50重量%のハニカムフィルタを製造した。

5 (比較例17)

(1) 実施例25の(1)と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 実施例25の(2)で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用いて上記多孔質セラミック部材を、図4を用いて説明した方法により多数結束させ、続いて、ダイヤモンドカッターを用いて切断することにより、図2に示したような円柱形状のセラミックブロックを作製した。

次に、上記シール材ペーストを用いて、上記セラミックブロックの外周にシール材ペースト層を形成した。そして、このシール材ペースト層を120℃で乾燥して、図2に示したハニカムフィルタ20のような、多孔質セラミック部材の間、及び、セラミックブロックの外周に形成されたシール材層の厚さが1.0mm、直径が145.8mmで円柱形状のハニカムフィルタを製造した。

比較例17で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ は7.4%であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合 $V\beta$ は0.60重量%であった。

20 (比較例18)

(1) 実施例29の(1)と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 実施例29の(2)で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用い、シール材層の厚さを0.5mmとしたほかは、比較例17の(2)と同様にしてハニカムフィルタを製造した。

25 比較例18で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合 $S\beta$ は4.0%であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合 $V\beta$ は0.60重量%であった。

(比較例 19)

(1) 実施例 33 の (1) と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 実施例 33 の (2) で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用い、シール材層の厚さを 0.25 mm としたほかは、比較例 17 の (2) と同様にしてハニカムフィルタを製造した。

比較例 19 で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  は 2.0 % であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V\beta$  は 0.60 重量%であった。

10 (比較例 20)

(1) 実施例 25 の (1) と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 繊維長 0.2 mm のアルミナファイバー 28 重量%、平均粒径 0.6  $\mu$ m の炭化珪素粒子 20 重量%、シリカゾル 15 重量%、カルボキシメチルセルロース 10 重量%、及び、水 27 重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用い、  
15 シール材層の厚さを 0.1 mm としたほかは、実施例 25 の (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

製造したハニカム構造体における、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合は 0.8 % であり、上記ハニカム構造体に対する、有機成分の割合は 0.60 重量%であった。

20 そして、上記ハニカム構造体を酸素雰囲気下 700 °C、90 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 0.8 % で、有機成分の割合  $V\beta$  が 0.05 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(比較例 21)

25 まず、比較例 20 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 600 °C、60 分の条件で加熱することで、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S\beta$  が 0.8 % で、有機成分の割合  $V\beta$  が 0.10 重

量%のハニカムフィルタを製造した。

(比較例 2 2)

まず、比較例 2 0 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 5 0 0℃、3 0 分の条件で加熱すること、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  が 0. 8 %で、有機成分の割合  $V \beta$  が 0. 2 0 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(比較例 2 3)

まず、比較例 2 0 の (1) 及び (2) と同様にしてハニカム構造体を製造した。

そして、このハニカム構造体を酸素雰囲気下 5 0 0℃、1 0 分の条件で加熱すること、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  が 0. 8 %で、有機成分の割合  $V \beta$  が 0. 5 0 重量%のハニカムフィルタを製造した。

(比較例 2 4)

(1) 実施例 2 5 の (1) と同様にして多孔質セラミック部材を製造した。

(2) 比較例 2 0 の (2) で用いたシール材ペーストと同様のシール材ペーストを用い、シール材層の厚さを 0. 1 mmとしたほかは、比較例 1 7 の (2) と同様にしてハニカムフィルタを製造した。

比較例 2 4 で製造したハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める面積の割合  $S \beta$  は 0. 8 %であり、上記ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V \beta$  は 0. 6 0 重量%であった。

実施例 2 5 ~ 3 6、及び、比較例 1 7 ~ 2 4 で製造したハニカムフィルタについて、上記実施例 1 ~ 4 及び比較例 1 について行った評価試験 1 及び 2 と同様の評価試験を行った。

それぞれの結果を下記表 9 に示す。

表 9

	S $\beta$ (%)	V $\beta$ (重量%)	HC増加率(%)	
			評価試験1	評価試験2
実施例25	7.4	0.05	8	1
実施例26	7.4	0.10	10	2
実施例27	7.4	0.20	12	8
実施例28	7.4	0.50	15	10
実施例29	3.8	0.05	6	1
実施例30	3.8	0.10	8	1.5
実施例31	3.8	0.20	10	6
実施例32	3.8	0.50	13	8
実施例33	1.9	0.05	4	0.5
実施例34	1.9	0.10	6	1
実施例35	1.9	0.20	8	6
実施例36	1.9	0.50	10	8
比較例17	7.4	0.60	40	35
比較例18	3.8	0.60	30	25
比較例19	1.9	0.60	25	20
比較例20	0.8	0.05	0.8	0
比較例21	0.8	0.10	1	0
比較例22	0.8	0.20	3	1
比較例23	0.8	0.50	5	3
比較例24	0.8	0.60	8	5

このように、実施例25～36、及び、比較例17～24に係るハニカムフィルタは、多孔質セラミック部材の間、及び、セラミックブロックの外周にシール材層が形成された構造であり、実施例25～36、及び、比較例17～19に係るハニカムフィルタは、いずれもハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、上記シール材層が占める割合S $\beta$ が2%以上である。

評価試験1の結果より、有機成分の割合V $\beta$ が0.50重量%以下である実施例25～36に係るハニカムフィルタでは、シール材層から排出される有機成分

の量が少なくなり、排出される排気ガス中のHCは殆ど増加することがなく、また、評価試験2の結果より、このようなハニカムフィルタに触媒を担持させると、外部に排出されるHCの増加率を非常に小さくすることができる。

一方、有機成分の割合 $V\beta$ が0.50重量%を超える比較例17～19に係るハニカムフィルタでは、シール材層から排出される有機成分の量が多くなり、排出される排気ガス中のHCの増加率が非常に大きくなっており、また、評価試験2の結果より、このようなハニカムフィルタに触媒を担持させると、外部に排出されるHCの増加率は若干低くなるものの、実施例25～36に係るハニカムフィルタに比べて非常に大きなものとなっていた。

また、比較例20～24に係るハニカムフィルタの評価試験1の結果より、ハニカムフィルタにおける、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める割合 $S\beta$ が2%未満であると、例えば、有機成分の割合 $V\beta$ が0.5重量%を超えるものであっても、上記シール材層から排出される有機成分の量が少なくなり、排出される排気ガス中のHCは殆ど増加しない。

即ち、上記 $S\beta$ が2%未満であるハニカムフィルタでは、例えば、シール材層に存在する有機成分の割合が多くなっても、比較例17～19に示したような、排出される排気ガス中のHC量が増加するという問題が生じない。

また、評価試験2の結果より、このようなハニカムフィルタに触媒を担持させると、外部に排出されるHCの増加率を非常に小さくすることができる。

20

(実施例37～39、及び、比較例25～26)

柱状体の外周に形成したシール材層の厚さを表10に示したように変更をしたほかは、実施例1と同様にしてハニカムフィルタを製造した。

(実施例40～41、参考例1、及び、比較例27)

多孔質セラミック部材の間、及び、セラミックブロックの外周のシール材層の厚さを表11に示したように変更したほかは、実施例13と同様にしてハニカムフィルタを製造した。

(実施例42～43、参考例2、及び、比較例28)

多孔質セラミック部材の間、及び、セラミックブロックの外周のシール材層の厚さを表 1 1 に示したように変更したほかは、実施例 2 5 と同様にしてハニカムフィルタを製造した。

### 5 (評価試験 3)

実施例 1、1 3、2 5、3 7～4 3、参考例 1～2、及び、比較例 2 5～2 8 で製造したハニカムフィルタに対して冷間静水圧プレスを行ったときの破壊強度（アイソスタティック強度）を測定した。その結果を表 1 0 及び 1 1 に示す。

表 1 0

	シール材層 厚さ(mm)	S $\alpha$ (%)	アイソスタティック 強度(kg/cm <sup>2</sup> )
実施例1	0. 5	1. 38	30
実施例37	0. 3	0. 83	27
実施例38	0. 2	0. 55	23
実施例39	0. 17	0. 47	20
比較例25	0. 14	0. 39	11
比較例26	0. 1	0. 28	8

表 1 1

	シール材層厚さ(mm)		S $\beta$ (%)	アイソスタティック 強度(kg/cm <sup>2</sup> )
	多孔質セラミック 部材の間	セラミックブロック の外周		
実施例13	1	1	7. 41	35
実施例40	0. 5	0. 5	3. 77	33
実施例41	0. 25	0. 25	1. 90	30
参考例1	0. 2	0. 2	1. 52	25
比較例27	0. 1	0. 1	0. 76	20
実施例25	1	1	7. 41	34
実施例42	0. 5	0. 5	3. 77	33
実施例43	0. 25	0. 25	1. 90	29
参考例2	0. 2	0. 2	1. 52	24
比較例28	0. 1	0. 1	0. 76	18



表 10 に示したように、多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された多孔質セラミックからなる柱状体の外周部にシール材層が形成されたハニカムフィルタでは、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める割合  $S_{\alpha}$  が小さくなるにつれて、アイソスタティック強度が低下していた。上記  $S_{\alpha}$  が 0.5 (0.47) % 以上であれば、必要なアイソスタティック強度を有していたが、上記  $S_{\alpha}$  が 0.5 (0.47) % 未満では、アイソスタティック強度の低下が特に大きくなり、十分なアイソスタティック強度を有していなかった。

また、表 11 に示したように、多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された柱状形状の多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されてセラミックブロックを形成し、前記セラミックブロックの外周部にもシール材層が形成されたハニカムフィルタでは、貫通孔に垂直な方向の上記貫通孔を含む断面の総面積に対する、シール材層が占める割合  $S_{\beta}$  が小さくなるにつれ、アイソスタティック強度が低下していた。上記  $S_{\beta}$  が 2 (1.90) % 以上であれば、必要なアイソスタティック強度を有していたが、上記  $S_{\beta}$  が 2 (1.90) % 未満では、アイソスタティック強度の低下が特に大きくなり、十分なアイソスタティック強度を有していなかった。

#### 産業上の利用可能性

本発明の排気ガス浄化用ハニカムフィルタは、上述の通りであるので、その内部に比較的多くのシール材層が存在していても、排出される排気ガス中の有機成分量が殆ど増加することはない。

## 請求の範囲

1. 多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された多孔質セラミックからなる柱状体の外周部にシール材層が形成され、前記貫通孔を隔てる壁部が粒子捕集  
5 用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハニカムフィルタであって、

前記排気ガス浄化用ハニカムフィルタにおける、前記貫通孔に垂直な方向の前記貫通孔を含む断面の総面積に対する、前記シール材層が占める面積の割合  $S_{\alpha}$  が 0.5 % 以上であり、かつ、前記排気ガス浄化用ハニカムフィルタに対する、  
10 有機成分の割合  $V_{\alpha}$  が 0.5 重量% 以下であることを特徴とする排気ガス浄化用ハニカムフィルタ。

2. 柱状体の内部に排気ガス浄化用触媒が担持されている請求の範囲第 1 項記載の排気ガス浄化用ハニカムフィルタ。  
15

3. 多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された柱状形状の多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されてセラミックブロックを形成し、前記セラミックブロックの外周部にもシール材層が形成され、前記貫通孔を隔てる隔壁が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成された排気ガス浄化用ハ  
20 ニカムフィルタであって、

前記排気ガス浄化用ハニカムフィルタにおける、前記貫通孔に垂直な方向の前記貫通孔を含む断面の総面積に対する、前記シール材層が占める面積の割合  $S_{\beta}$  が 2 % 以上であり、かつ、前記排気ガス浄化用ハニカムフィルタに対する、有機成分の割合  $V_{\beta}$  が 0.5 重量% 以下であることを特徴とする排気ガス浄化用ハ  
25 ニカムフィルタ。

4. 多孔質セラミック部材の内部に排気ガス浄化用触媒が担持されている請求の範囲第 3 項記載の排気ガス浄化用ハニカムフィルタ。

[2003年8月4日(04.08.03)国際事務局受理:  
新しい請求の範囲5、6が加えられた;他の請求の範囲は変更なし。(1頁)]

5. (追加) シール材層は、接着機能を有する請求の範囲第1項～第4項のいずれかに記載の排気ガス浄化用ハニカムフィルタ。
6. (追加) シール材層は、無機バインダー及び／又は無機粒子を含有する請求  
5 の範囲第1項～第5項のいずれかに記載の排気ガス浄化用ハニカムフィルタ。

## 条約第 19 条 (1) に基づく説明書

- 追加された請求の範囲第 5 項は、請求の範囲第 1 項～第 4 項に係る排気ガス浄化用ハニカムフィルタを構成するシール材層について、該シール材層が接着機能を有するものに限定されたものである。排気ガス浄化用ハニカムフィルタにおいて、シール材層が接着機能を有することが望ましいことは、明細書第 8 頁 14～15 行、明細書第 9 頁 19～20 行、及び、明細書第 15 頁 19～23 行に記載されている。従って、本補正はこの記載に基づいて行われたものであり、出願時における国際出願の開示の範囲内のものである。
- 10 追加された請求の範囲第 6 項は、請求の範囲第 1 項～第 5 項に係る排気ガス浄化用ハニカムフィルタを構成するシール材層について、該シール材層が無機バインダ及び／又は無機粒子を含有するものに限定されたものである。排気ガス浄化用ハニカムフィルタにおいて、シール材層が無機バインダ及び／又は無機粒子を含有するものであることは、明細書第 8 頁 5～7 行、及び、明細書第 15 頁 19
- 15 ～23 行に記載されている。従って、本補正はこの記載に基づいて行われたものであり、出願時における国際出願の開示の範囲内のものである。

1/8

図1

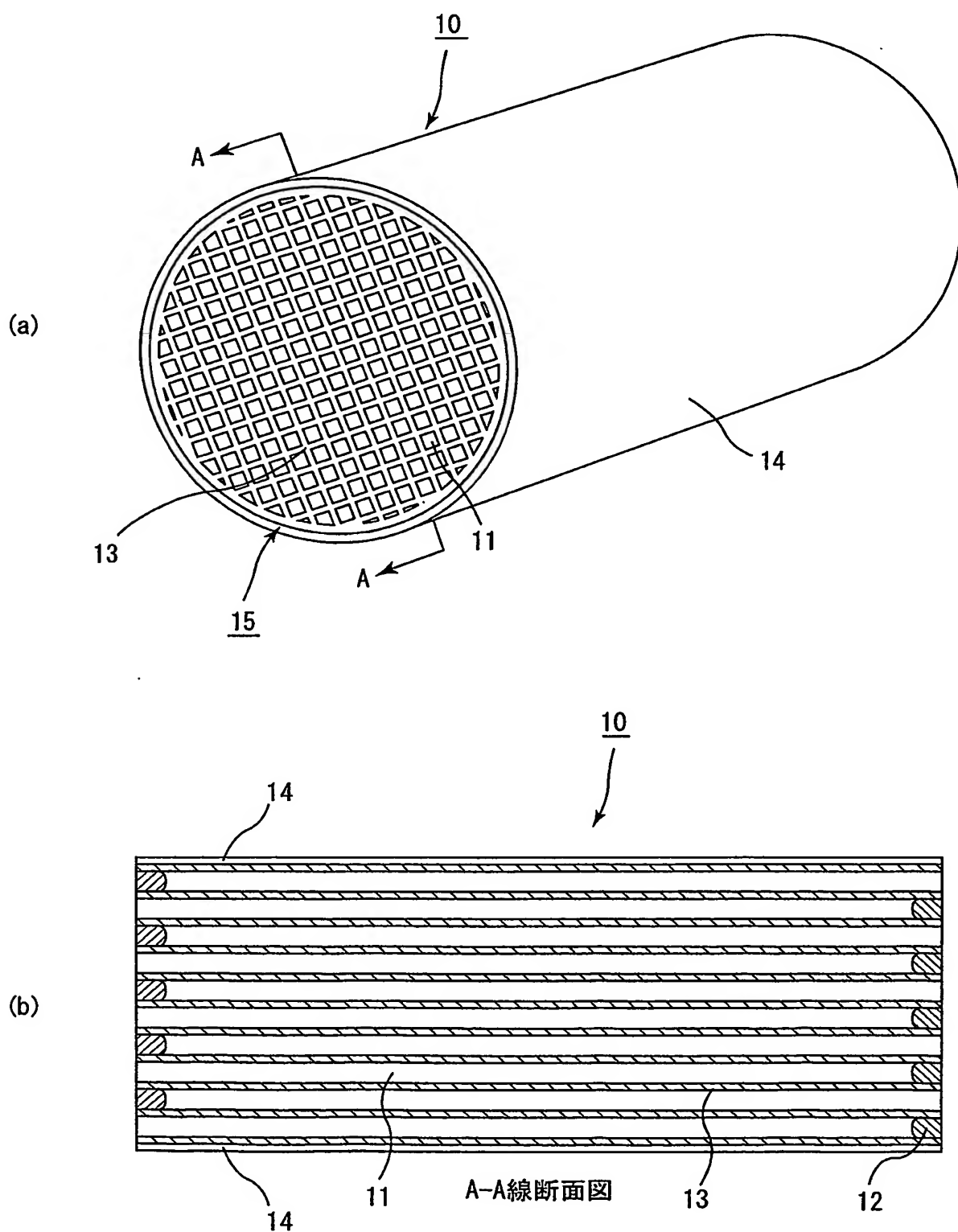


図2

2/8

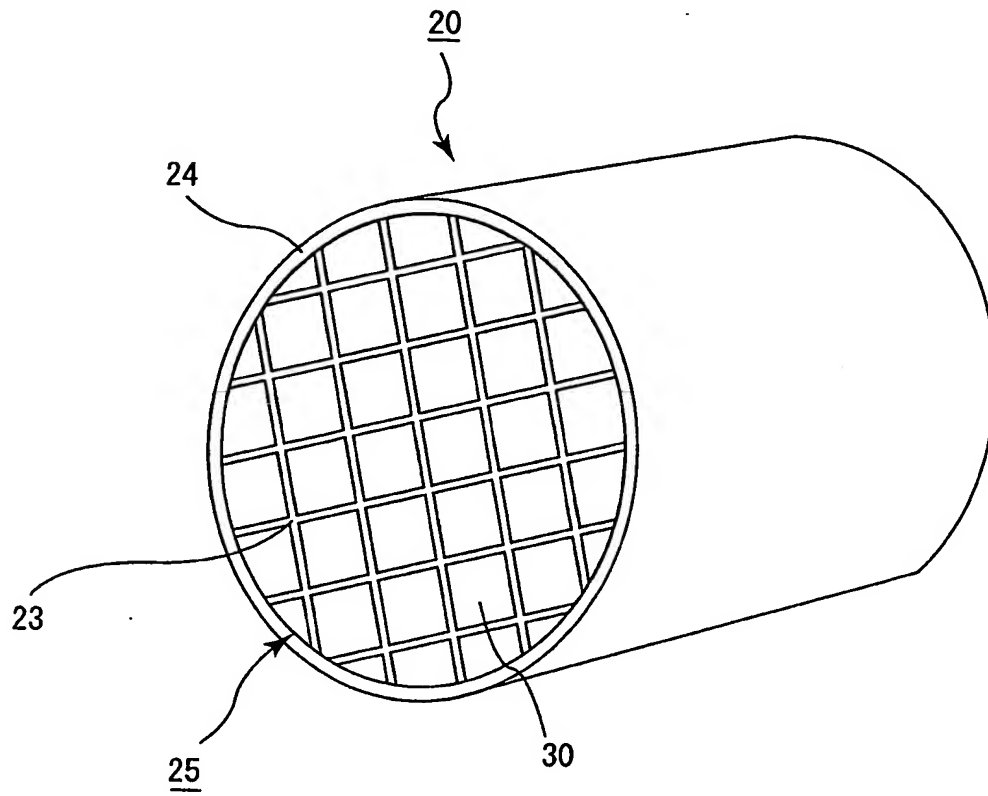
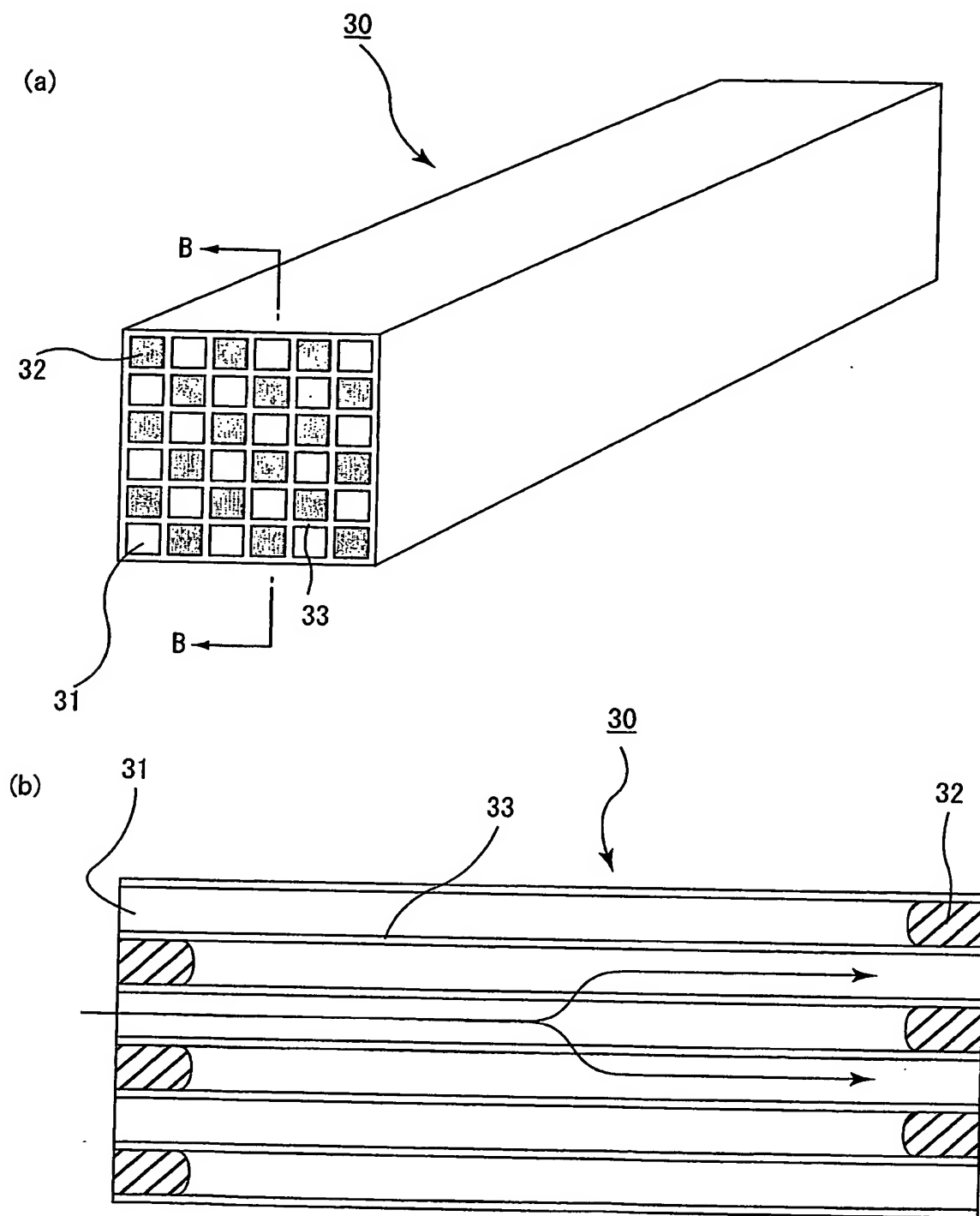


図3

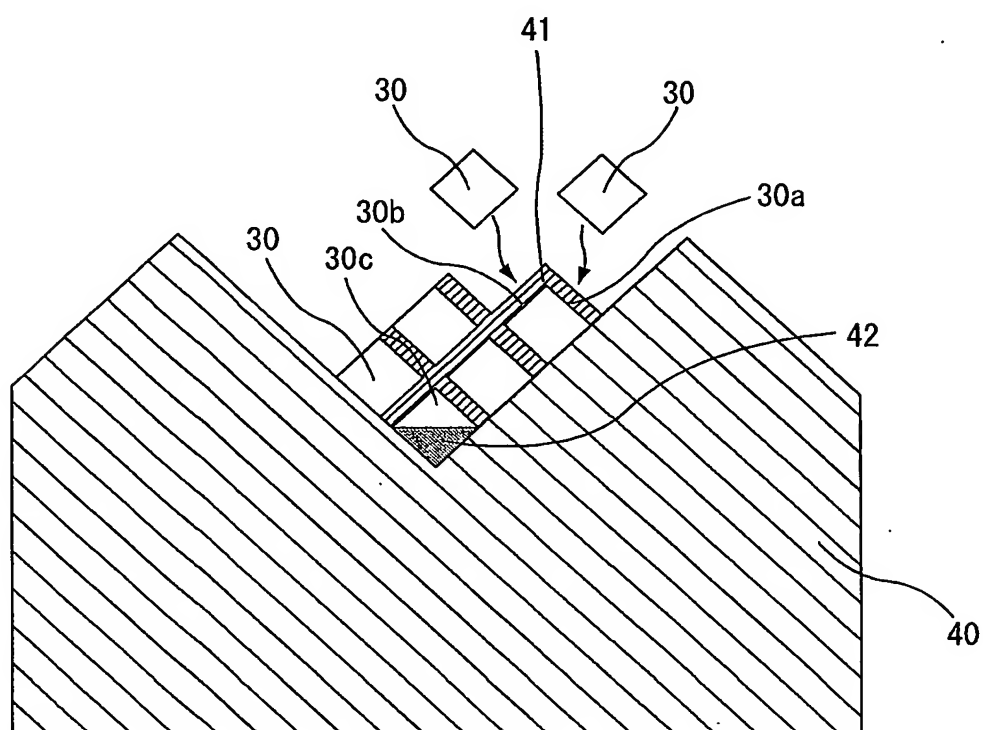
3/8



B-B線断面図

4/8

図4





5/8

図5

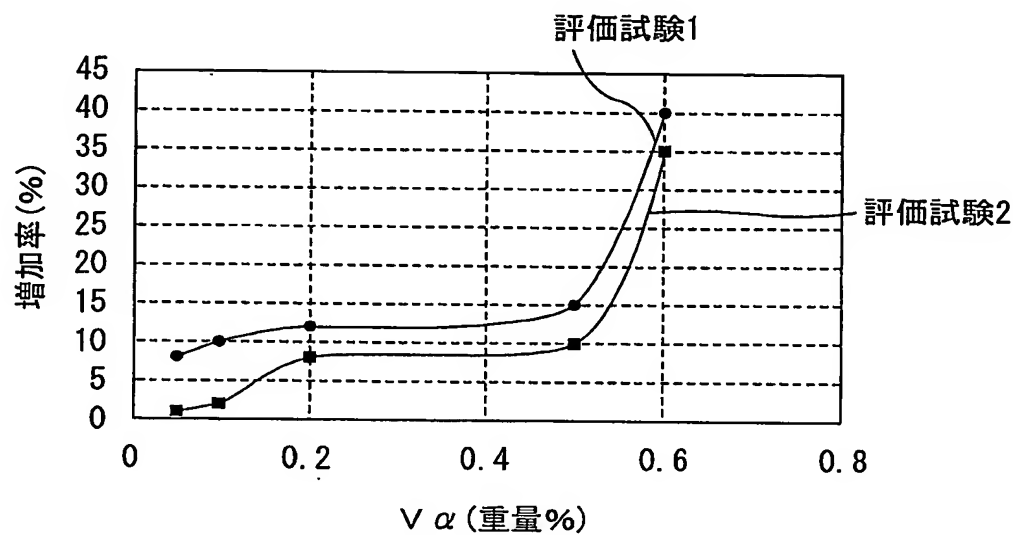
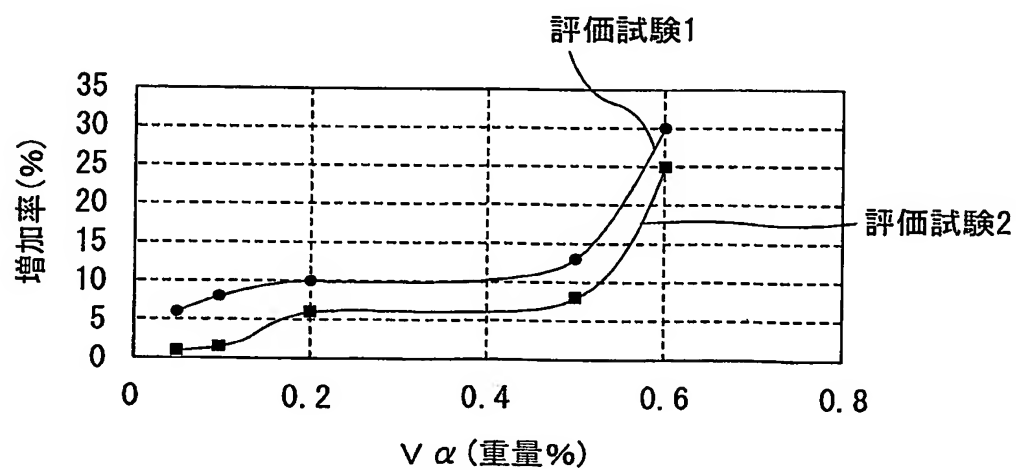


図6



6/8

図7

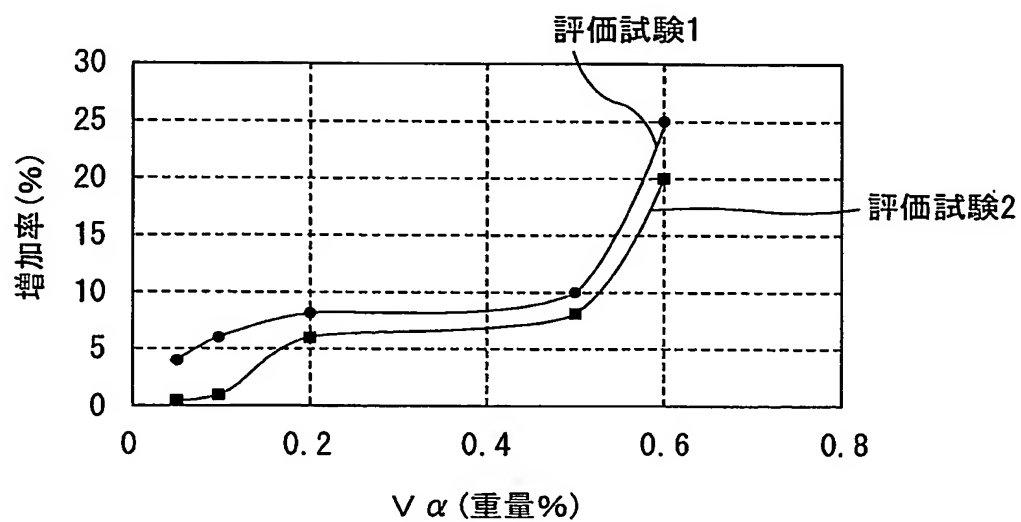
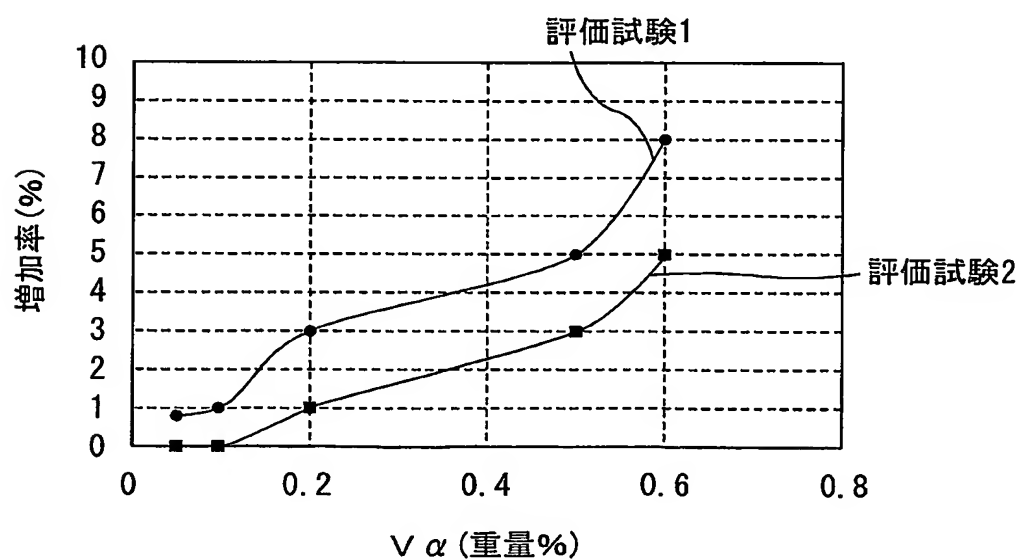


図8



7/8

図9

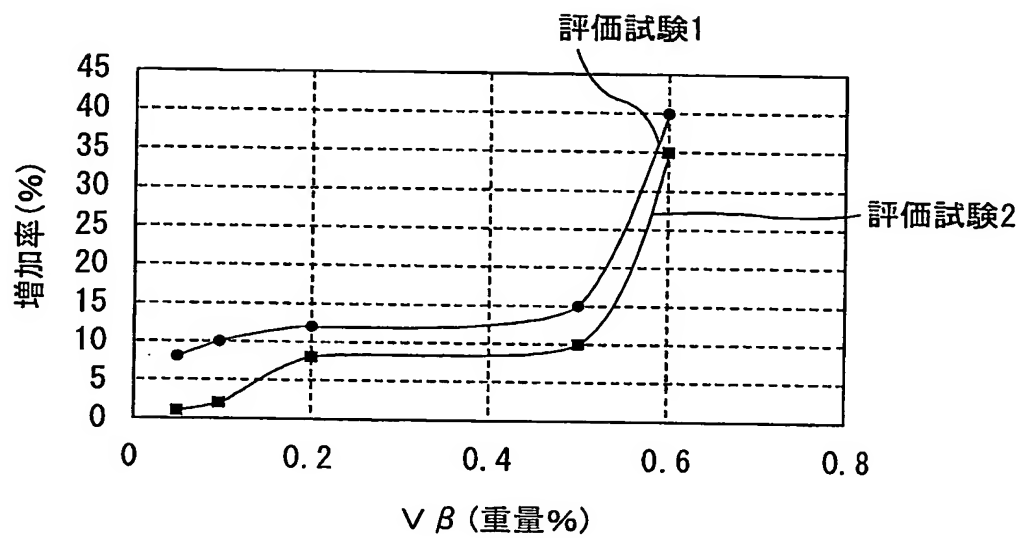
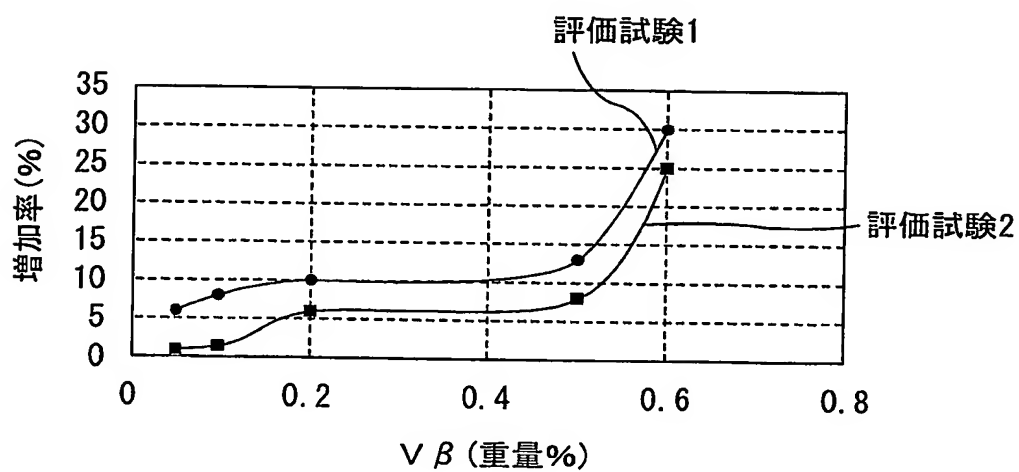


図10



8/8

図11

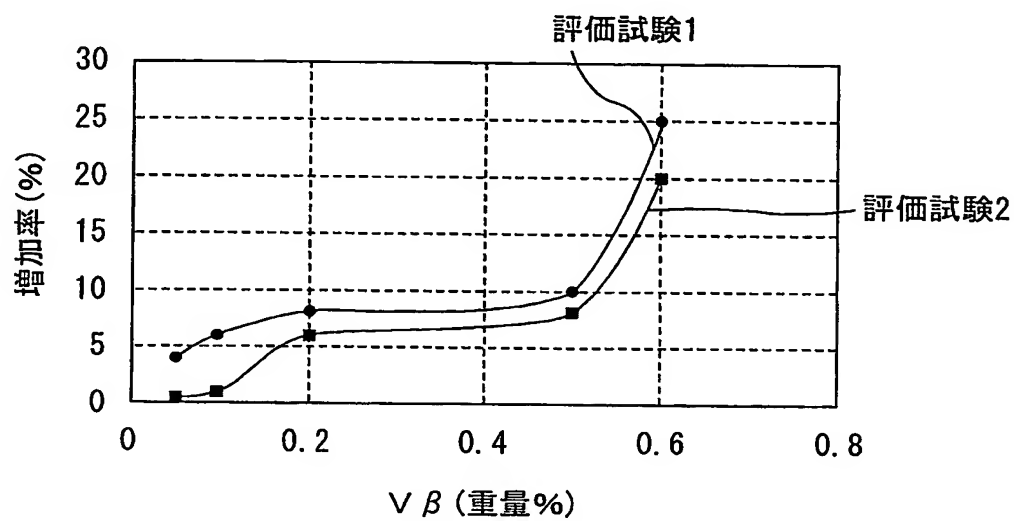
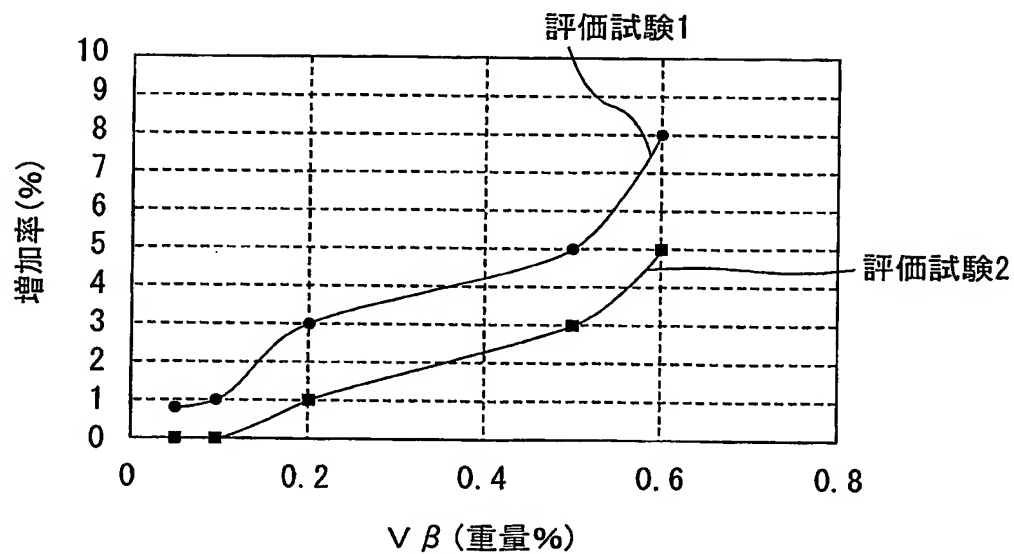


図12



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/JP03/03495

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> F01N3/28

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl.<sup>7</sup> F01N3/28, F01N3/02, B01D46/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 01/71170 A (IBIDEN CO., LTD.), 27 September, 2001 (27.09.01), Full text; all drawings & JP 2001-259438 A	1, 2 3, 4
X Y	JP 2001-289028 A (IBIDEN CO., LTD.), 19 October, 2001 (19.10.01), Par. No. [0018] (Family: none)	1, 2 3, 4
X Y	JP 2002-70545 A (IBIDEN CO., LTD.), 08 March, 2002 (08.03.02), Fig. 4 (Family: none)	3, 4

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
03 July, 2003 (03.07.03)

Date of mailing of the international search report  
15 July, 2003 (15.07.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/03495

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2000-220448 A (IBIDEN CO., LTD.), 08 August, 2000 (08.08.00), Par. Nos. [0020] to [0021] (Family: none)	1-4

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> F01N 3/28

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> F01N 3/28, F01N 3/02, B01D 46/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2003年  
日本国実用新案登録公報 1996-2003年  
日本国登録実用新案公報 1994-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	WO 01/71170 A (IBIDEN CO., LTD.), 2001. 09. 27, 全文、全図 & JP 2001-259438 A	1, 2 3, 4
X Y	JP 2001-289028 A (イビデン株式会社), 2001. 10. 19, 段落0018 (ファミリーなし)	1, 2 3, 4
Y	JP 2002-70545 A (イビデン株式会社), 2002. 03. 08, 図4 (ファミリーなし)	3, 4

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

03. 07. 03

国際調査報告の発送日

15.07.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

亀田 貴志



3 T 9719

電話番号 03-3581-1101 内線 3355

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 2000-220448 A (イビデン株式会社) , 2000.08.08, 段落0020-0021 (ファミリーなし)	1-4